Untersuchungen zur Kernquadrupolwechselwirkung in Metallen mit der Methode gestörter γ-Winkelverteilungen nach Kernreaktionen

INAUGURALDISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
der
Freien Universität Berlin
Fachbereich Physik

vorgelegt von
Rainer Sielemann
aus Gütersloh

Juni 1974

Untersuchungen zur Kernquadrupolwechselwirkung in Metallen mit der Methode gestörter γ-Winkelverteilungen nach Kernreaktionen

INAUGURALDISSERTATION

zur Erlangung der Doktorwürde

der Freien Universität Berlin

Fachbereich Physik

vorgelegt von Rainer Sielemann

aus Gütersloh

- Juni 1974 -

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

1. Gutachter: Prof. Dr. K.H. Lindenberger

2. Gutachter: Prof. Dr. E. Matthias

Tag der mündlichen Prüfung: 3o. 1o. 1974

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Zusammenfassung	1
1. Einleitung	3
2. Über den Ursprung der elektrischen Feldgradienten in Metallen	6
2.1 Feldgradienten in nichtkubischen Metallen	6
2.2 Feldgradienten durch Symmetrie- und Ladungsstörung - das Modell von Friedel	8
2.3 Struktur der Feldgradienten in den Problemstellungen dieser Arbeit	10
3. Meßmethoden der gestörten γ-Winkelverteilung	12
4. Statische Quadrupolwechselwirkung von Germanium in Zink und Gallium	14
4.1 Die isomeren Kernzustände in ^{67,69,71}Ge	14
4.2 Die Störfunktion $G_k(t)$ der statischen Quadrupolwechselwirkung	15
4.3 Experimentelle Durchführung	18
4.4 Ergebnisse und Diskussion	20
5. Die elektrischen Feldgradienten an Fremdatomen in nichtkubischen Metallen mit s-p-Leitungselektronenbändern	26
5.1 Veränderungen der Feldgradienten reiner Metalle durch Einführung eines Fremdatoms	26
5.2 Ermittlung von Feldgradienten an Fremdatomen aus Literaturdaten von Quadrupolkopplungskonstanten	28
5.3 Modellvorstellung für die Feldgradienten an Fremdatomen im Rahmen der Theorie der Ladungsabschirmung	33
6. "Störwechselwirkungen" - Quadrupolwechselwirkung in symmetrie- und ladungsgestörten Metallgittern	45
6.1 Grundlagen zur Messung der Symmetrie- und Ladungsstörung in Metallen	45
6.1.1 Die elektrischen Feldgradienten	46
6.1.2 Die Strahlenschädigung in Metallen nach Kernreaktionen	48
6.2 Messungen und Analysen von PAC-, PAD- und SOPAD-Experimenten in ladungs- und symmetriegestörten Metallen	53
6.2.1 Statische Störwechselwirkung, H_Q^{Pert}, in kubischen Gittern	53
6.2.2 Statische Störwechselwirkung bei zusätzlichem externen Magnetfeld, $H_Q^{Pert} + H_M$	61
6.2.3 Zeitabhängige Störwechselwirkung, $H_Q^{Pert}(t)$	66
6.2.4 Zeitabhängige Störwechselwirkung bei zusätzlichem externen Magnetfeld, $H_Q^{Pert}(t) + H_M$	67
6.2.5 Zusammenfassung	74
Anhang: Quadrupolmomente von Kernzuständen in Ge und Zn	77
Schlußbemerkung	85
Literaturverzeichnis	86

Zusammenfassung

Diese Arbeit handelt von Messungen zur Untersuchung der elektrischen Hyperfeinwechselwirkung an isomeren Kernzuständen in Nichtübergangsmetallen mit der Methode gestörter γ-Winkelverteilungen nach Kernreaktionen.

Ein Aspekt dabei ist die statische elektrische Quadrupolwechselwirkung in nichtkubischen Metallen, die an den drei angeregten Ge Kernzuständen ^{67}Ge ($I^{\pi} = 9/2^{+}$, $T_{1/2}$ = 70 nsec), ^{69}Ge ($I^{\pi} = 9/2^{+}$, $T_{1/2}$ = 2800 nsec) und ^{71}Ge ($I^{\pi} = 5/2^{-}$, $T_{1/2}$ = 84 nsec) in Zn und Ga gemessen wird. Die Anregung der Kerne erfolgt durch die Reaktionen Zn(α,n)Ge und Ga(p,n)Ge mit 13 MeV α-Teilchen bzw. 6.5 MeV Protonen des gepulsten Strahls am Berliner 7 MV Van de Graaff Beschleuniger. Aus den gemessenen Quadrupolkopplungskonstanten wird das Verhältnis der Quadrupolmomente bestimmt. Eine Diskussion dieser Momente wird im Rahmen der Rumpfpolarisationstheorie von Noya, Arima und Horie[1] durchgeführt; zur Unterscheidung zwischen den Momenten der Isotope wird das Modell erweitert und nichtganzzahlige Besetzung der Schalenmodellzustände zugelassen. Aus den Quadrupolkopplungskonstanten läßt sich folgern, daß das Fremdatom Ge eine Veränderung des elektrischen Feldgradienten von Zn und Ga an der Kernsonde bewirkt. Eine Analyse bekannter Quadrupolkopplungsfrequenzen von Fremdatomen in polyvalenten Metallen bestätigt diese Folgerung in allgemeinerem Umfang. Eine systematische Erklärung dafür wird vorgeschlagen, indem der Einfluß des Fremdatoms auf den elektrischen Feldgradienten als p-Wellen Ladungsabschirmung behandelt wird, die die lokale Zustandsdichte der Leitungselektronen an der Fermikante verändert. Die gegenüber dem reinen Ga veränderte Symmetrie des Feldgradienten am Ge-Kernort wird diskutiert.

Der zweite Aspekt der Quadrupolwechselwirkung nach Kernreaktionen ist die Erzeugung von "Störquadrupolwechselwirkung" durch Strahlenschädigung des Metallgitters (Symmetriestörung). Es wird untersucht, wie diese Störwechselwirkung sich auf die Form der γ-Winkelverteilung auswirkt.

Die Gitterfehler werden als Punktstörungen behandelt, die um sich elektrische Feldgradienten erzeugen, die im Modell von Friedel[2] beschrieben werden können. Durch Analogieschlüsse aus Experimenten in verdünnten Legierungen (Ladungsstörung), in denen die Fremdatome ebenfalls diese Art von elektrischen Feldgradienten hervorrufen, lassen sich quantitative Aussagen über den Umfang der Strahlenschädigung durch die Kernreaktionen machen und mit Aussagen anderer festkörperphysikalischer Experimente vergleichen. Neben der al-

leinigen Wirkung der Feldgradienten durch Symmetrie- und Ladungsstörung wird die Überlagerung mit statischer magnetischer Wechselwirkung diskutiert. Durch Kombination der experimentellen Daten mit einfachen Ansätzen zur Beschreibung der Störwechselwirkung gelingt es, die wesentlichsten Formen der Relaxationserscheinungen nach Kernreaktionen zu deuten. Die Aussagekraft der Experimente für atomare Bewegungsvorgänge wird diskutiert.

1. Einleitung

Studiert man Hyperfeinwechselwirkung in einem Festkörper an angeregten Kernzuständen, die direkt mit einer Kernreaktion erzeugt werden, so ergibt sich wegen des hohen Energieübertrags auf die Kernsonde eine Störung der Festkörperstruktur. In einem nichtmagnetischen Festkörper führt das im allgemeinen zu einer Quadrupol-"Störwechselwirkung", und damit ist der Hyperfeinwechselwirkung des ungestörten Festkörpers stets die Störwechselwirkung überlagert. Bei vielen "in beam" Untersuchungen mit kurzlebigen Kernzuständen ($\tau \approx$ psec bis nsec) tritt die Störwechselwirkung kaum auf, sie ist offenbar zu gering, um bei der Frequenzauflösung dieser Sonden Einfluß zu nehmen. Die zunehmende Verwendung langlebiger Kernzustände ($\tau \approx$ µsec bis msec) zu "in-beam" Hyperfeinuntersuchungen bringt den Einfluß der Störwechselwirkung ans Licht und zeigt damit auch die Möglichkeit, diese Kernsonden primär zur Untersuchung der Strahlenschädigungsprozesse einzusetzen.

Will man die statische Quadrupolwechselwirkung in nichtkubischen Metallen "in-beam" studieren, so ergeben sich also zwei Aspekte der elektrischen Hyperfeinwechselwirkung, die durch die Meßmethode miteinander verbunden sind. Eine Reihe von Experimenten[3,4] hat bereits gezeigt, daß sich die Störwechselwirkung mit wachsender Temperatur des Festkörpertargets verringern läßt. Die Experimente in der vorliegenden Arbeit zeigen mit bisher höchster Genauigkeit, daß bei Temperaturen dicht unterhalb des Schmelzpunktes von Zn und Ga eine vollständige "Temperaturentkopplung" von reiner- und Störwechselwirkung auftritt.

Die reine Quadrupolwechselwirkung in nichtkubischen Metallen wird in dieser Arbeit an angeregten Kernzuständen von Fremdatomen gemessen, ein ungelöstes Problem liegt in der Frage nach einer möglichen Veränderung des elektrischen Feldgradienten durch die veränderte elektronische Struktur des Fremdatoms und seiner unmittelbaren Umgebung.

Speziell für Nichtübergangsmetalle, die in der vorliegenden Arbeit ausschließlich behandelt werden, gibt es zu diesem Thema nur wenige Beiträge. Sie beziehen sich auf das System Cd-In[5-7]; die Quadrupolwechselwirkung im reinen In und Cd wird mit der des Cd-Fremdatoms in In (bzw. In in Cd) verglichen und die Folgerung gezogen, daß die elektrischen Feldgradienten durch das jeweilige Wirtsgitter bestimmt sind (bis auf Korrekturen durch den Sternheimerfaktor γ_∞)[5]. Ein wesentliches Hindernis für die Analyse der elektrischen Feldgradienten liegt häufig in der Unkenntnis der Quadrupolmomente der betei-

ligten Kernzustände. Die Berechnung dieser Momente aus Kernmodellen ist bisher nur sehr unzuverlässig möglich, diese Schwierigkeit läßt sich teilweise durch systematische Untersuchungen von Quadrupolwechselwirkungen umgehen, indem Schlüsse aus relativen Veränderungen von elektrischen Feldgradienten gezogen werden können.

Damit ist die Problematik der Untersuchung von Quadrupolwechselwirkung in Metallen mit der Methode gestörter Winkelverteilungen nach Kernreaktionen in den wesentlichen Punkten dargestellt, zur Bearbeitung der Probleme werden in der vorliegenden Arbeit folgende Ansätze gemacht:

1. Jegliche Art von Gitterstörung, ob durch Strahlenschädigung oder durch die Anwesenheit eines Fremdatoms, wird im Rahmen der Ladungsabschirmtheorie von Friedel[2] behandelt. Dabei muß die Unterscheidung gemacht werden, ob der elektrische Feldgradient im Innenraum einer Störzelle (z.B. am Kernort eines Fremdatoms in einem nichtkubischen Metall) oder im Außenraum (z.B. einige Gitterplätze vom Störzentrum entfernt) gemessen wird. Die Trennung von Innen- und Außenraum wird durch die Elektronenhülle des Störzentrums definiert.
2. Die Gitterstörungen durch Kernreaktionen lassen sich unter diesem Aspekt auch durch verdünnte Legierungen realisieren, also durch Einführung von Ladungsstörstellen. Der Vergleich der Quadrupolstörwechselwirkung von Legierungen mit der von Strahlenschädigung läßt Rückschlüsse auf die Stärke der Strahlenschädigung zu.
3. Die bei der Beobachtung der Quadrupolwechselwirkung in Zn und Ga verwendeten Kernzustände liegen in verschiedenen Ge-Isotopen. Für die Interpretation der Quadrupolmomente wird das Konfigurationsmischungsmodell[1] erweitert, indem man eine nichtganzzahlige Besetzung der Schalenmodellzustände zuläßt. Damit lassen sich Unterschiede der Quadrupolmomente gleicher Kernzustände in verschiedenen Isotopen verstehen.

Zur Gliederung der Arbeit:

Abschnitt 2. und 3. geben Einführungen zur vorliegenden Arbeit, Abschnitt 2. über die Ursachen und die Beschreibung von elektrischen Feldgradienten in Metallen, Abschnitt 3. über die verwendeten Meßmethoden. In Abschnitt 4. ist die Messung der statischen Quadrupolwechselwirkung von drei Ge-Zuständen in Zn und Ga beschrieben; es zeigt sich dabei, daß die elektrischen Feldgradienten an den Ge-Sonden von den Feldgradienten der reinen Metalle verschieden sind. In Abschnitt 5. wird eine Modellvorstellung für diesen Unterschied ent-

wickelt und mit experimentellen Daten aus der Literatur belegt. In Abschnitt 6. wird das Problem der Quadrupol-Störwechselwirkung behandelt, zunächst die festkörperphysikalischen Grundlagen dargestellt und dann die Form der Störwechselwirkung unter verschiedenen experimentellen Bedingungen untersucht. Im Anhang findet sich die Untersuchung der für diese Arbeit wichtigen Kernquadrupolmomente in Ge und Zn.

2. Über den Ursprung der elektrischen Feldgradienten in Metallen

In diesem Abschnitt werden die zwei unterschiedlichen Ursachen dargestellt, die zum Auftreten von EFG in Metallen führen. Modellvorstellungen dafür werden beschrieben, und im letzten Punkt dieses Abschnitts wird ein Überblick gegeben, welche Art von Felgradient in den verschiedenen Experimenten dieser Arbeit gemessen wird.

2.1 Feldgradienten in nichtkubischen Metallen

In Metallgittern mit nichtkubischer Gittersymmetrie entsteht aus der Ladungsverteilung $\varrho(\vec{r})$ des Metalls ein EFG am Ort der Atomkerne. Eine vollständige Kenntnis der Ladungsverteilung erlaubt eine Berechnung des elektrostatischen Potentials und damit des EFG an jedem beliebigen Punkt des Kristalls.

$$eq \equiv V_{zz} = \int \varrho(\vec{r}) \frac{2P_2(\cos\theta)}{r^3} d^3r \qquad (2.1)$$

Der EFG, ein Tensor 2. Stufe, ist im achsialsymmetrischen Fall durch die Angabe von eq vollständig bestimmt; für nichtachsialsymmetrische Fälle braucht man eine zweite Größe zur Kennzeichnung, den Asymmetrieparameter η (siehe Abschnitt 4.2).

In Metallgittern ist die Kenntnis der Ladungsverteilung besonders unvollständig; die Elektronen der Gitteratome verhalten sich zwischen den zwei Grenzfällen lokalisiert als Ionenrümpfe bis fast frei beweglich als Leitungselektronen, die Übergänge sind fließend. Eine einfache Parametrisierung des EFG wird erlaubt durch eine Modellvorstellung, die metallische Gitter in positiv geladene Ionenrümpfe und Leitungselektronen aufteilt. Beide Anteile ergeben Beiträge zum EFG, diese Aufteilung läßt sich jedoch bisher experimentell nicht verifizieren, da stets nur die Summe (der totale EFG) gemessen werden kann.

Während die Berechnung des Anteils der Ionenrümpfe keine prinzipiellen Schwierigkeiten enthält, ist der Beitrag der Leitungselektronen bisher kaum theoretisch behandelt worden. Zwei neuere Ansätze existieren:

a) Der EFG hängt von allen Leitungselektronen des k-Raumes ab ("Fermi-Volumeneffekt"), die Berechnung des EFG geschieht mit Modellwellenfunktionen für alle Elektronenenergien. Rechnungen mit diesem Ansatz liegen für die Metalle Be (Mohapatra et al.)[8], Mg (Jena et al.)[9], Cd (Mohapatra et al.)[10]

und Sb (Hygh et al.)[11] vor. Die Beiträge der verschiedenen Elektronenbänder können verschiedenes Vorzeichen haben ("shielding" bzw. "antishielding" der Ionenrümpfe).

b) Der EFG hängt nur von den Leitungselektronen an der Fermikante ab, er wird hervorgerufen von der Einwirkung des Gitterpotentials auf die Fermielektronen. Metalle mit hoher Zustandsdichte an der Fermikante sollten bevorzugt diesem Mechanismus unterliegen (Übergangsmetalle, aber auch Metalle mit p-Leitungselektronen), das Vorzeichen dieses Beitrags sollte stets dem Vorzeichen des Beitrags der Ionenrümpfe entgegengesetzt sein ("shielding"). Diese Modellvorstellung wurde von Watson et al.[12] eingeführt.

Keiner der beiden Ansätze kann nach dem jetztigen Erkenntnisstand verworfen werden.

Nach diesen Vorstellungen läßt sich eine Parametrisierung des EFG darstellen als

$$q = (1-\gamma'_\infty)(1+\delta)\,q_{lat} + q_{el} \qquad (2.2)$$

oder zusammenfassend:

$$q = q_{ion} + q_{el} \qquad (2.3)$$

eine Summe aus dem Gitteranteil q_{ion} und dem Anteil der Leitungselektronen, q_{el}, mit Verstärkungsfaktoren von q_{lat}. Dabei ist q_{lat} der EFG der Ionenrümpfe, die als Punktladungen angenommen werden; der Einschluß höherer Ladungsverteilungsmomente erbringt nur eine geringfügige Korrektor ($\approx$ 1%)[5]. Die Verstärkungsfaktoren sind der Sternheimerfaktor γ'_∞, der die Polarisation der Rumpfelektronen durch q_{lat} berücksichtigt und hier mit einem Strich versehen wird wegen der theoretischen Unsicherheit, diesen Faktor in einem Metall zu benutzen(wird aber im folgenden wieder ohne Strich verwendet) und der Faktor $(1+\delta)$, der einen Beitrag der entfernteren Leitungselektronen als erhöhte effektive Ladung der Ionenrümpfe darstellt (Das et al.)[13].

Die Rechnungen von Das et al.[14] für die Gitterbeiträge q_{ion} vieler nichtkubischer Metalle und Vergleiche mit den totalen EFG zeigen, daß der Leitungselektronenanteil q_{el} in den meisten Fällen dominierend ist.

2.2 Feldgradienten durch Symmetrie- und Ladungsstörung - das Modell von Friedel

Durch die Einführung eines Fremdatoms in eine metallische Matrix wird das Gitter gestört (Ladungsstörung) und es bildet sich eine um das Fremdatom lokalisierte Störung der Elektronenstruktur aus. In der von Friedel[2] entwickelten Modellvorstellung wirkt das Fremdatom wie ein Störpotential, an dem die Leitungselektronen des Metalls gestreut werden. Hat das Fremdatom eine höhere Wertigkeit als die Gastmatrix, so verliert es eine entsprechend größere Anzahl von Elektronen in das Leitungsband, es verbleibt ein Ionenrumpf höherer positiver Ladung als die Ionenrümpfe des Gastgitters. Dadurch wirkt das Fremdatom als attraktives Potential, und es ergibt sich eine erhöhte Leitungselektronendichte um das Fremdatom. Bei niedrigerer Wertigkeit des Fremdatoms relativ zur Matrix ergibt sich entsprechend ein abstoßendes Potential und verringerte Elektronendichte am Fremdatom.

Die quantenmechanische Rechnung betrachtet die Streuung von Leitungselektronen an einem Potential, die Elektronen erfahren dadurch Phasenverschiebungen δ_l. Dadurch ändert sich lokal ihre Zustandsdichte. Mit den Annahmen, daß das Streupotential V(r) kugelsymmetrisch und von endlicher Reichweite sei, und daß die Leitungselektronen als freie Elektronen (ebene Wellen) behandelt werden können, errechnet Friedel[2] die räumliche Verteilung der Abschirmladung für den Grenzfall $r \to \infty$ als:

$$\Delta S(r) = -\frac{1}{2\pi^2 r^3} \sum_l (2l+1) \sin\delta_l(k_F) \cos\left(2k_F r + \delta_l(k_F) - l\pi\right) \qquad (2.4)$$

Dabei ist r der Abstand vom Streuzentrum, k_F der Impuls (Wellenzahl) der Elektronen an der Fermikante* und $\delta_l(k_F)$ sind die Streuphasen an der Fermikante, wobei l der Drehimpuls der relativ zum Streuzentrum entwickelten l-ten Partialwelle ist.

Die Abschirmladung in größerer Entfernung vom Streuzentrum ist also eine oszillierende Funktion von $(k_F r)$ und nimmt mit r^{-3} vom Streuzentrum ab. Die Lösung des Streuproblems liegt in der Angabe der Streuphasen δ_l.

---

* Die Wellenzahl k_F bleibt in der verdünnten Legierung erhalten, es gibt keinen Unterschied zwischen k_F(Matrix) und k_F(Fremdatom), diese Aussage heißt "Theorem starrer Bänder".

Dazu gibt es zwei mögliche Lösungswege:

a) Annahme eines Modellpotentials für das Fremdatom im Gastgitter und analytische Berechnung der Streuphasen.

b) Die halbempirische Methode, die bekannte physikalische Größen verwendet, die ebenfalls von den Streuphasen abhängen, aus denen dann die Streuphasen extrahiert werden können (z.B. der Restwiderstand einer Legierung).

Beide Methoden, in a) zur Festlegung der Potentialstärke und in b) als zusätzliche Bedingung für die Größe der δ_1 benutzen die Friedelsche Summenregel:

$$\Delta Z = \frac{2}{\pi} \sum_{\ell} (2\ell+1)\, \delta_\ell(k_F) \qquad (2.5)$$

wobei ΔZ die Wertigkeitsdifferenz $Z-Z_o$ zwischen Fremdatom und Gastgitter ist. Diese Summenregel ist eine Selbstkonsistenzbedingung für das Streupotential und ergibt sich, indem die Abschirmladung $\Delta\varrho$ über r integriert und gleich der Wertigkeitsdifferenz ΔZ gesetzt wird.

Haben Wirts- und Fremdatom verschiedene Atomvolumina, so muß das einfache Bild der Ladungsdifferenz $\Delta Z = Z-Z_o$ korrigiert werden. Blatt[15] entwikkelte dafür folgende Vorstellung: Mit V_o als Volumen eines Wirtsgitteratoms läßt sich das Fremdatomvolumen V als $V_o(1+\beta)$ beschreiben. Wenn die mittlere Ladungsdichte der Leitungselektronen in einer Wirtsatomzelle Z_o/V_o ist, so wird das Fremdatom ohne Störung der Leitungselektronen bereits von $Z_o(1+\beta)$ Elektronen abgeschirmt, und die verbleibende Ladungsdifferenz ist:

$$\delta Z = Z - Z_o(1+\beta) = \Delta Z - Z_o\beta \qquad (2.6)$$

Der Parameter β läßt sich für polyvalente Metalle aus dem Poisson-Verhältnis σ und den Atomvolumina der Metalle bestimmen, er lautet:

$$\beta = 1/3\,[(1+\sigma)/(1-\sigma)]\left(\frac{V-V_o}{V_o}\right) \qquad (2.7)$$

σ ist ein Maß für die elastischen Eigenschaften der Wirtsmatrix. Mit dieser Definition für δZ werden also auch Effekte berücksichtigt, die auftreten, wenn Matrix und Fremdatom isovalent sind, wie z.B. Zn und Cd.

Der ursprüngliche Blattsche Ansatz zur Beschreibung der unterschiedlichen Größen von Fremdatom und Matrixatom geht nicht von den Atomvolumina V aus,

sondern verwendet statt

$$1/3\ \frac{(V-V_o)}{V_o} \quad \text{das Verhältnis } \delta a/a,$$

das die relative Änderung des Gitterparameters a pro Atomprozent gelöster Fremdatome beschreibt. Dieser Ansatz war für isotrope Medien (kubische Metalle) bestimmt, die polyvalenten Metalle mit nichtkubischer Gitterzelle sind aber anisotrop. Die Substitution von $\delta a/a$ durch $1/3\ \frac{(V-V_o)}{V_o}$ wurde von Farrell et al.[16] durchgeführt und am Beispiel des Wirtsgitters Zn für die polyvalenten Metalle diskutiert; es zeigte sich eine weitgehende Äquivalenz beider Ansätze. Die Volumina V lassen sich aus dem Atomgewicht A und der Dichte ϱ der reinen Metalle bestimmen, $V = A/\varrho$.

Der elektrische Feldgradient

Die Ladungsdichteoszillationen (2.4) um das abgeschirmte Fremdatom führen zu einem EFG-Feld, das die gleiche Symmetrie wie $\Delta\varrho(r)$ hat, also an einem Atom in der Nähe des Fremdatoms achsialsymmetrisch um die Verbindungslinie Atom-Fremdatom ist. Der EFG ist proportional zu (2.4) und läßt sich nach Kohn und Vosko[17] in kompakter Form schreiben als

$$q = \alpha \cdot \frac{\varrho\pi}{3}\ \frac{A\cos(2k_F r_i + \varphi)}{r_i^3} \qquad (2.8)$$

r_i ist der Ort eines Nachbaratoms in der i-ten Schale um das Fremdatom, α ist ein Verstärkungsfaktor, der von der Rechnung mit Blochwellen anstelle ebener Wellen herrührt und außerdem den r-abhängigen Sternheimerfaktor $\gamma(r)$, und damit die Polarisierung der Rumpfelektronen, einschließt. A und φ sind nur von den Phasenverschiebungen $\delta_l(k_F)$ abhängig.

Statt eines Fremdatoms kann auch eine Gitterstörung wie eine Ladungsstörung wirken, z.B. bildet eine Leerstelle in einer zweiwertigen Matrix ein abstoßendes Potential für die Elektronen, da die Leerstelle relativ zu den Ionenrümpfen zweifach negativ geladen ist. Dies wird im folgenden als "Symmetriestörung" bezeichnet.

2.3 Struktur der Feldgradienten in den Problemstellungen dieser Arbeit

Die Abb. 1 gibt eine Aufschlüsselung der verschiedenen Strukturen von EFG, die in den diskutierten Experimenten dieser Arbeit eine Rolle spielen.

Durch die Unterscheidung, daß die Meßsonde entweder ein Matrixatom oder ein Fremdatom sein kann, ergeben sich Modifizierungen der zwei Formen von EFG, die in Abschnitt 2.1 und 2.2 dargestellt wurden.

Der EFG am Orte von Fremdatomen in nichtkubischen Metallen ist ein spezielles Meßergebnis dieser Arbeit, (Abschnitt 4.). In Abschnitt 5. wird eine Modellvorstellung für dieses Problem entwickelt.

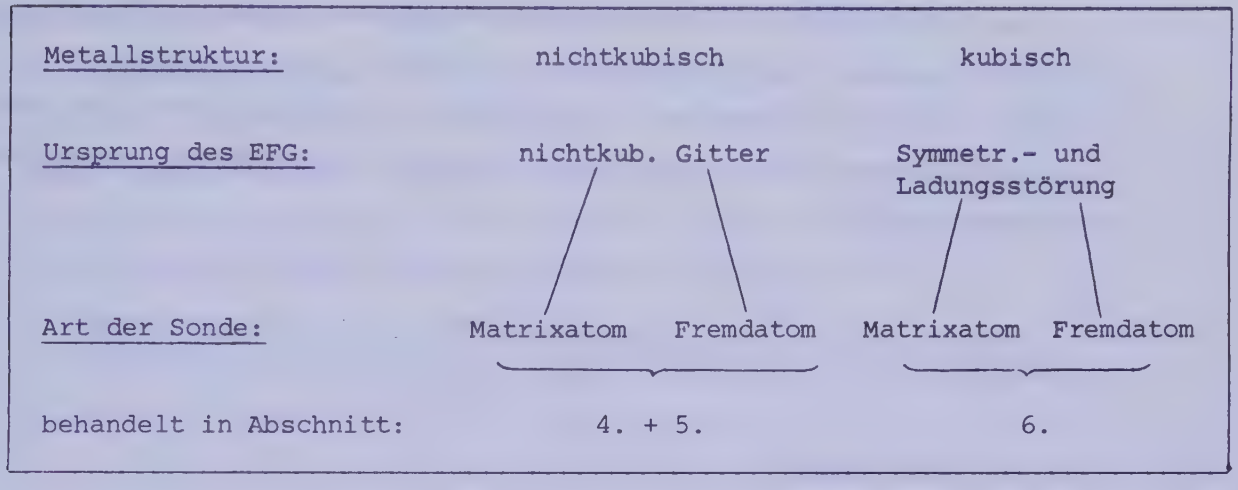


Abb. 1: Verschiedene Formen der elektrischen Feldgradienten, die in den in dieser Arbeit diskutierten Experimenten vorkommen.

Die EFG durch Symmetrie- und Ladungsstörung können nicht direkt gemessen werden, die ungefähren Stärken, die zur Diskussion der Festkörperprobleme nötig sind, werden im Rahmen der Friedeltheorie abgeschätzt. Diese Art von EFG spielt bei den Experimenten von Abschnitt 6. eine Rolle; der Unterschied zwischen Matrixatomsonde und Fremdatomsonde hinsichtlich der Stärke des EFG wird nur kurz in Abschnitt 6.1.1 erläutert, da er natürlich auch nicht gemessen werden kann.

3. Meßmethoden der gestörten γ-Winkelverteilung

Das Prinzip der angewendeten Meßmethoden ist die Beobachtung der γ-Winkelverteilung beim Zerfall isomerer Kernzustände, die durch Kernreaktionen angeregt und ausgerichtet ("aligned") werden. Eine ausführliche Darstellung der Grundprinzipien der gestörten γ-Winkelverteilung findet sich in einem Artikel von Frauenfelder und Steffen[18].

Drei verschiedene Methoden zur Beobachtung der gestörten Winkelverteilung sind in den folgenden Experimenten benutzt (bzw. diskutiert):

a) Die zeitlich differentielle Beobachtung der γ-Winkelverteilung nach Kernreaktionen (DPAD). Die Formel für die Intensität der γ-Winkelverteilung heißt:

$$I(\theta,t) = U + I_0 \exp(-t/\tau)\left\{1 + \sum_{k\geq 2} A_k G_k(t) P_k(\cos\theta)\right\} \qquad (3.1)$$

mit U : Untergrund

τ : Lebensdauer des isomeren Zustands

A_k: Anisotropiekoeffizient der γ-Winkelverteilung, abhängig von Eigenschaften des γ-Übergangs und der Kernreaktion

$G_k(t)$: Störfaktor der Winkelverteilung

$P_k(\cos\theta)$: Legendre-Polynome

Die Aussage über die Hyperfeinwechselwirkung ergibt sich aus der Ermittlung des Störfaktors $G_k(t)$.

b) Die stroboskopische Beobachtung der Kernlarmorpräzession (SOPAD)[19].
Bei dieser Methode ist die "Hauptstörung" der γ-Winkelverteilung bereits vorgegeben, die Kerne präzedieren in einem externen Magnetfeld $\vec{B}$ mit der Larmorfrequenz $\omega_L = -g \frac{\mu_N}{\hbar} B$; g ist der g-Faktor des Kernzustands, μ_N das Kernmagneton. Im Gegensatz zur DPAD handelt es sich bei der SOPAD um eine zeit-integrale Meßmethode; man erhält die Informationen aus einer Resonanzkurve mit ähnlichem Informationsgehalt wie die Resonanzkurven der NMR.

Die normierte Intensität der Resonanzkurve läßt sich beschreiben durch:

$$I(t_0,\tau,T_0,B,\theta) = 1 \pm b_2 \frac{(1/\tau)^2}{(1/\tau)^2 + 4(\omega_L - \omega_{L0})^2} \qquad (3.2)$$

t_o und T_o sind Zeitparameter für die Beobachtung der γ-Intensität, b_2 hängt zusammen mit dem Anisotropiekoeffizienten A_2 über

$$b_2 = \frac{3/4\, A_2}{1 + 1/4\, A_2}$$

(hierbei ist die Winkelverteilung der Gl. (3.1) nur bis zum Glied k = 2 berücksichtigt).

Zusätzliche Störwechselwirkungen verändern diese einfache Resonanzformel, der Einfluß dieser Störungen wird in Abschnitt 6. diskutiert.

c) In Abschnitt 6. werden außerdem Arbeiten diskutiert, die mit der Methode der zeitdifferentiellen γ-γ-Winkelkorrelation an radioaktiven Präparaten (DPAC) gemacht wurden. Die Beschreibung der γ-Intensität ist die gleiche wie in Gl. (3.1), statt von der Kernreaktion hängt hier der Koeffizient A_k von dem das isomere Niveau bevölkernden γ-Übergang ab.

4. Statische Quadrupolwechselwirkung von Germanium in Zink und Gallium

In diesem Abschnitt werden die Experimente zur Quadrupolwechselwirkung von isomeren Ge-Zuständen in hexagonalem Zn-Metall und orthorhombischem Ga-Metall beschrieben und die Ergebnisse diskutiert.

4.1 Die isomeren Kernzustände in $^{67,69,71}Ge$

Die Quadrupolwechselwirkung in Zn und Ga wurde an drei isomeren Ge-Kernzuständen untersucht, die durch Kernreaktionen in den Metallen erzeugt und ausgerichtet (aligned) wurden.

a) Der $9/2^+$-Zustand in ^{67}Ge wurde während dieser Arbeit gefunden, die Spinzuordnung ergibt sich eindeutig aus der Form der Quadrupolwechselwirkung. Darüberhinaus läßt sich Spin und Parität folgern aus dem magnetischen Moment[20] und auch aus der Halbwertszeit von 70 nsec, die bei der γ-Übergangsenergie von 734 keV einem Übergang durch M2-Strahlung analog den $9/2^+ \rightarrow 5/2^-$-Übergängen in ^{69}Ge und ^{71}Ge entspricht. Der Grundzustand von ^{67}Ge hat vermutlich Spin und Parität $1/2^-$, das läßt sich aus neueren Messungen des β^+-Zerfalls[21] von ^{67}Ge und Spinbestimmungen durch Kernreaktionen für verschiedene Zustände von ^{67}Ga[22] folgern. Damit zerfällt der $9/2^+$-Zustand nicht in den Grundzustand, und seine absolute Anregungsenergie ist unbekannt. Aus der Messung von γ-Spektren mit einem Ge(Li)-Detektor läßt sich eine obere Grenze für die γ-Energie angeben, die den $5/2^-$-Zustand entvölkert: $E_\gamma \leq 50$ keV.

b) Der $9/2^+$-Zustand in ^{69}Ge hat eine Anregungsenergie von 398 keV. Er zerfällt über M2-Strahlung in den $5/2^-$-Grundzustand mit einer Halbwertszeit von 2.8 µsec

c) Der $5/2^-$-Zustand in ^{71}Ge liegt bei 175 keV Anregungsenergie und zerfällt über E2-Strahlung in den $1/2^-$-Grundzustand. Seine Halbwertszeit beträgt 84 nsec.

Abb. 2 zeigt die niedrig angeregten Kernzustände der drei Ge-Isotope.

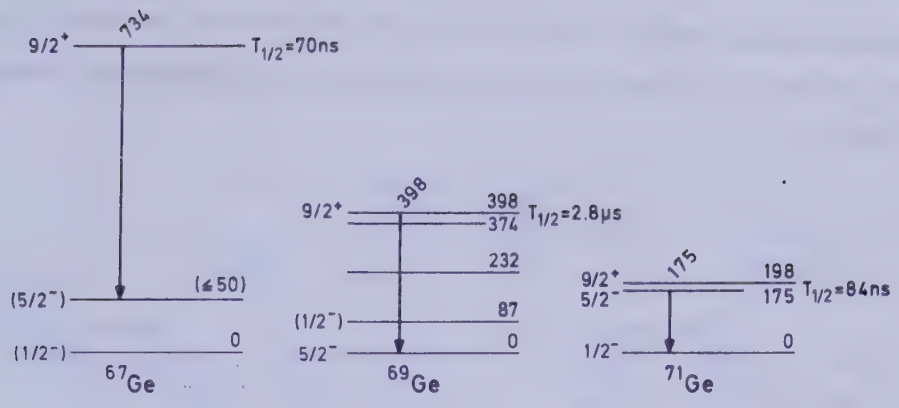


Abb. 2: Niedrig angeregte Zustände der Kerne $^{67,69,71}Ge$.

Die Quadrupolwechselwirkung wurde jeweils an den Zuständen mit Halbwertszeitangabe gemessen; der Pfeil zeigt den beobachteten γ-Übergang. Die Daten für ^{67}Ge stellen, bis auf den Grundzustandsspin, Ergebnisse dieser Arbeit dar, die Daten für ^{69}Ge und ^{71}Ge sind aus Ref. 19.

4.2 Die Störfunktion $G_k(t)$ der statischen Quadrupolwechselwirkung

Der Hamiltonoperator für die statische Quadrupolwechselwirkung lautet[23]:

$$H_Q = \frac{e^2 Q q}{4I(2I-1)} \left[3I_z^2 - I^2 - \eta/2\,(I_+^2 + I_-^2)\right] \qquad (4.1)$$

mit I^2, I_z^2, I_+^2, I_-^2 : Kernspinoperatoren

$eq \equiv V_{zz}$: z-Komponente des EFG

$\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}}$: Asymmetrieparameter

Q : Kernquadrupolmoment

Mit der Vereinbarung $|V_{xx}| \leq |V_{yy}| \leq |V_{zz}|$ gilt für η:

$$0 \leq \eta \leq 1$$

Aus Gl. (4.1) ergibt sich die Fallunterscheidung:

a) achsialsymmetrischer EFG, $\eta = 0$:
dann ist H_Q diagonal in der m-Darstellung und die Eigenwerte lassen sich direkt angeben:

$$H_Q(\eta=0) = \frac{e^2 Q q}{4I(2I-1)} \left[3I_z^2 - I^2\right] \tag{4.2}$$

$$\langle Im|H_Q|Im\rangle = 3m^2 - I(I+1)\frac{e^2 Q q}{4I(2I-1)} \tag{4.3}$$

Die Zustände $\pm$ m sind entartet.
Definiert man in (4.3) die Energieeinheit durch

$$\hbar\omega_q = \frac{e^2 Q q}{4I(2I-1)} \tag{4.4}$$

so gibt (4.3) die Hyperfeinaufspaltung als Funktion von $|m|$ in Einheiten $\hbar\omega_q$ an.

b) nichtachsialsymmetrischer Feldgradient, $\eta \neq 0$:
H_Q in Gl. (4.1) ist wegen der Leiteroperatoren I_+^2, I_-^2 nicht diagonal in der m-Darstellung, die Nichtdiagonalelemente von H_Q sind:

$$\langle m'|H_Q(\eta\neq 0)|m\rangle =$$

$$= \frac{e^2 Q q}{4I(2I-1)} \cdot \eta/2 \left[(I\mp m-1)(I\mp m)(I\pm m+1)(I\pm m+2)\right]^{1/2} \delta_{m',m\pm 2} \tag{4.5}$$

Zusammen mit den Diagonalelementen aus (4.3) läßt sich somit die vollständige Wechselwirkungsmatrix H_Q aufstellen. Die Energieeigenwerte dieser Matrix erhält man durch numerische Diagonalisierung mit einer unitären Matrix V, so daß gilt:

$$V H_Q V^{-1} = 1$$

Die Abb. 3 zeigt die Hyperfeinaufspaltung für die Kernspins 5/2 und 9/2 als Funktion des Asymmetrieparameters η. Die Energieeigenwerte sind durch die Quan-

tenzahlen |m| gekennzeichnet, die streng nur für η = 0 gültig sind. Die Energie auf der Ordinate ist in Einheiten $[\hbar\omega_q(I)]$ und $[e^2 q Q]$ aufgetragen. Die Energieeigenwerte stammen aus der Arbeit von Cohen[24].

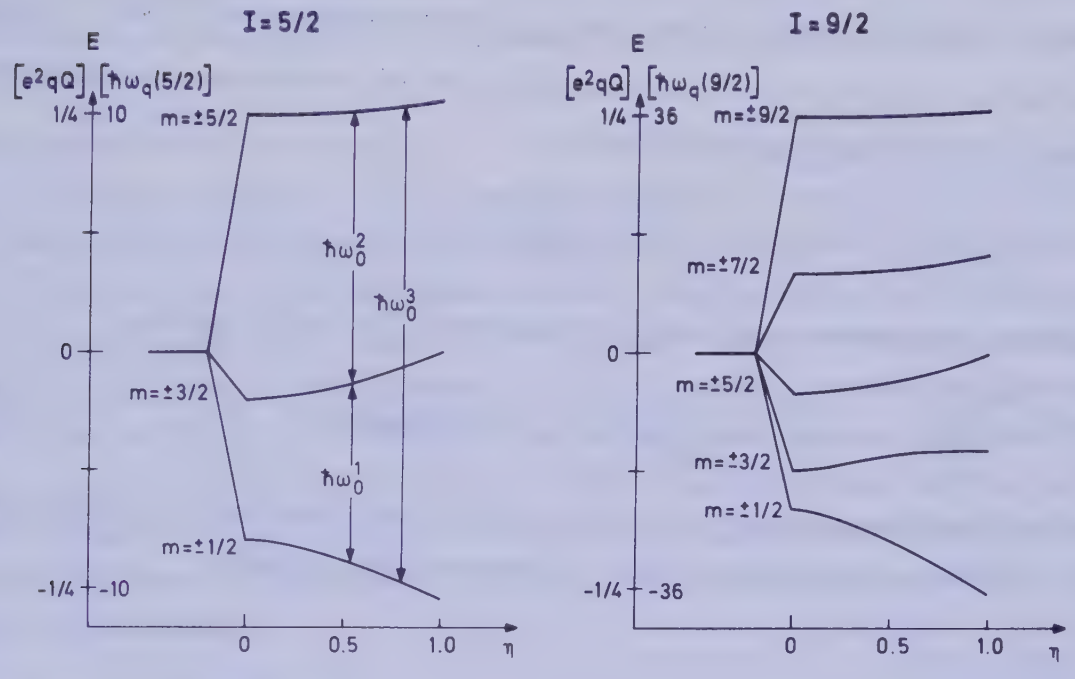


Abb. 3: Hyperfeinaufspaltung durch Quadrupolwechselwirkung für die Kernspins 5/2 und 9/2 als Funktion des Asymmetrieparameters η. Die Aufspaltungsenergie E ist in Einheiten $[e^2 q Q]$ und $[\hbar\omega_q(I)]$ angegeben. Für den Spin 5/2 sind die drei Übergangsenergien (n=1,2,3) $\hbar\omega_o^n$ eingezeichnet. Die numerischen Werte entstammen der Arbeit von Cohen[24].

Der Störfaktor $G_k(t)$

Die Störfunktion $G_k(t)$ wird durch Überlagerung der Hyperfeinübergangsfrequenzen gebildet, der allgemeine Ausdruck heißt[18]:

$$G_k(t) = S_{k0} + \sum_{n=1}^{N} S_{kn} \cos(\omega_n^o t) \qquad (4.6)$$

n durchläuft alle positiven ganzen Zahlen $1/2|m^2-m'^2|$ für halbzahlige I.

Die Werte ω_o^n stellen die Übergangsfrequenzen der Hyperfeinaufspaltung dar. Für den achsialsymmetrischen Fall $\eta = 0$ sind die ω_o^n ganzzahlige Vielfache der niedrigsten Übergangsfrequenz ω_o^1, $\omega_o^n = n\omega_o^1$ und sind mit der Quadrupolfrequenzeinheit ω_q verknüpft durch

$$\omega_o^1 = 6\,\omega_q \qquad \text{für halbzahlige I} \qquad (4.7)$$

Für $\eta \neq 0$ sind sowohl die Faktoren s_{kn} wie die Frequenzen ω_o^n von η abhängig.

In der Literatur ist es üblich, als Maß für die Stärke der Quadrupolwechselwirkung die Quadrupolkopplungsfrequenz

$$e^2 Q\, q/h$$

anzugeben. Der Zusammenhang mit der Frequenz ω_o^1 in (4.7) lautet:

$$e^2 Q\, q/h = \frac{4I(2I-1)}{6 \cdot 2\pi}\,\omega_o^1 \qquad \text{(I halbzahlig)} \qquad (4.8)$$

Setzt man den Störfaktor $G_k(t)$ (4.6) in die Entwicklung für die Winkelverteilung (3.1) ein, so ergibt sich die allgemeine Meßgleichung:

$$I(\theta, t) = \qquad (4.9)$$

$$= U + I_0 \exp(-t/\tau)\left\{1 + \sum_k \sum_n A_k \left(s_{k0} + s_{kn}\cos(\omega_o^n t)\right) P_k(\cos\theta)\right\}$$

4.3 Experimentelle Durchführung

a) Strahl und Kernreaktionen

Die Kernreaktionen $^{69}Ga(p,n)^{69}Ge$ und $^{71}Ga(p,n)^{71}Ge$ wurden mit 6.5 MeV Protonen induziert, die Reaktionen $^{64}Zn(\alpha,n)^{67}Ge$, $^{66}Zn(\alpha,n)^{69}Ge$ und $^{68}Zn(\alpha,n)^{71}Ge$ mit ca. 13 MeV α-Teilchen. Als Strahlpulsung diente für die Zustände in $^{67,71}Ge$ die interne Pulsung des Van de Graaff Beschleunigers mit 1 µs Pulsabstand, für das langlebige Niveau in ^{69}Ge wurde der Pulsabstand mit einem elektrostatischen Strahlimpulsunterdrücker auf 8 µs heraufgesetzt. Die Ionenstromstärken auf dem Target betrugen einige 10 nA, die Breite der Strahlimpulse betrug zwischen 5 nsec und 10 nsec.

b) Targets

Die Targets waren jeweils polykristalline Proben aus natürlichem Isotopengemisch, nur für die Reaktion zum ^{69}Ge wurde angereichertes ^{66}Zn (>90%) verwendet. Die Zn-Targets wurden unter H_2-Atmosphäre reduziert und in Form flacher Plättchen von einigen mm Durchmesser zusammengeschmolzen. Die Ga-Targets wurden geschmolzen und in Form flacher Scheiben abgeschreckt. Die chemische Reinheit der Zn-Proben war >99.9%, der Ga-Proben >99.99%. Die Dicke der Targets war so groß, daß die Geschoßteilchen vollständig darin gestoppt wurden.

c) Temperaturregelung der Targets

Die Zn-Targets waren auf gut leitenden Metallrahmen befestigt, die mit einer Widerstandsheizung auf die erforderlichen Temperaturen dicht unterhalb des Schmelzpunktes gebracht werden konnten. Thermoelemente an verschiedenen Stellen der Targetproben und der Metallrahmen wurden zur Temperaturmessung benutzt. Die Regelung der Temperatur erfolgte über den Heizstrom. Die Temperatur von -20°C für die Ga-Targets (der Schmelzpunkt des Ga liegt bei 30°C) wurde mit einer Flüssigkeitskühlung erreicht. Methanol wurde auf die entsprechende Temperatur gebracht und durch einen Metallhohlrahmen gepumpt, auf dem das Ga-Scheibchen aufgeschmolzen war. Die Temperaturkontrolle erfolgte wieder über Thermoelemente.

d) Detektoren und Elektronik

Die γ-Strahlung wurde in NaJ(Tl)-Kristallszintillatoren in für jede γ-Energie geeigneter Dicke gemessen, die Detektoren befanden sich unter 0° und 90° relativ zur Einschußachse des Teilchenstrahls. Die Nachweiselektronik bestand aus einer Schnell-Langsam-Koinzidenzanordnung, der Zeitnullpunkt der verzögerten γ-Quanten wurde durch den Strahlimpuls des Beschleunigers definiert.

Auswertung

Die Entwicklung der Winkelverteilung in (4.9) kann für die Übergänge 9/2→5/2 und 5/2→1/2 prinzipiell bis zum Term k = 4 gehen. Die Koeffizienten s_{kn} wurden für die achsialsymmetrischen Spektren berechnet[18] und dem Auswerteprogramm als Konstanten eingegeben, für die nichtachsialsymmetrischen Spektren wurden die s_{kn} vom Auswerteprogramm berechnet.

Die gemessenen Spektren wurden vom Untergrund befreit und aus der Intensität der γ-Strahlung unter 0° und 90° folgende Funktion gebildet:

$$R(t) = \{I(0°) - I(90°)\} / \{I(0°) + I(90°)\} \qquad (4.10)$$

Diese läßt sich näherungsweise ausdrücken als

$$R(t) = b_2 G_2(t) + b_4 G_4(t)$$

mit $b_2 \approx 3/4\ A_2$ und $b_4 \approx 5/16\ A_4$

Die Anpassung dieser Funktion an die Meßdaten lieferte die zu bestimmenden Parameter A_2, A_4, η, $\frac{e^2 Q q}{h}$. Außerdem wurden der Zeitnullpunkt und eine von der Zeit abhängige Nullinie als freie Parameter behandelt.

4.4 Ergebnisse und Diskussion

In den Abb. 4 - 6 sind die Funktionen R(t) für die Quadrupolwechselwirkung der Ge-Zustände in Zn und Ga dargestellt. Die Tabelle 1 zeigt die Zusammenstellung der experimentellen Ergebnisse. Der obere Teil faßt die Kerneigenschaften der Germaniumsonden zusammen, der mittlere Teil gibt die experimentellen Bedingungen an und der untere Teil zeigt die Resultate der Quadrupolkopplungsfrequenzen, des Asymmetrieparameters η und der Anisotropieparameter A_2 und A_4.

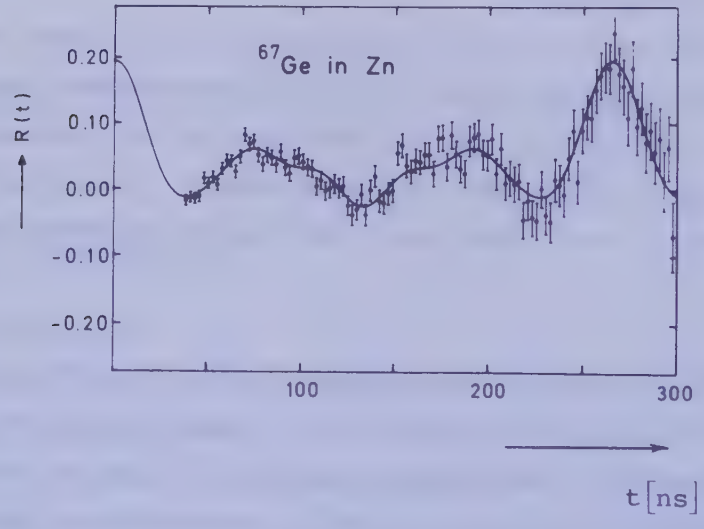


Abb. 4: Modulationsspektrum der Quadrupolwechselwirkung des $9/2^+$-Zustands von ^{67}Ge in polykristallinem Zink bei 360°C. Die ausgezogene Kurve ist eine Anpassung mit achsialsymmetrischem Feldgradienten.

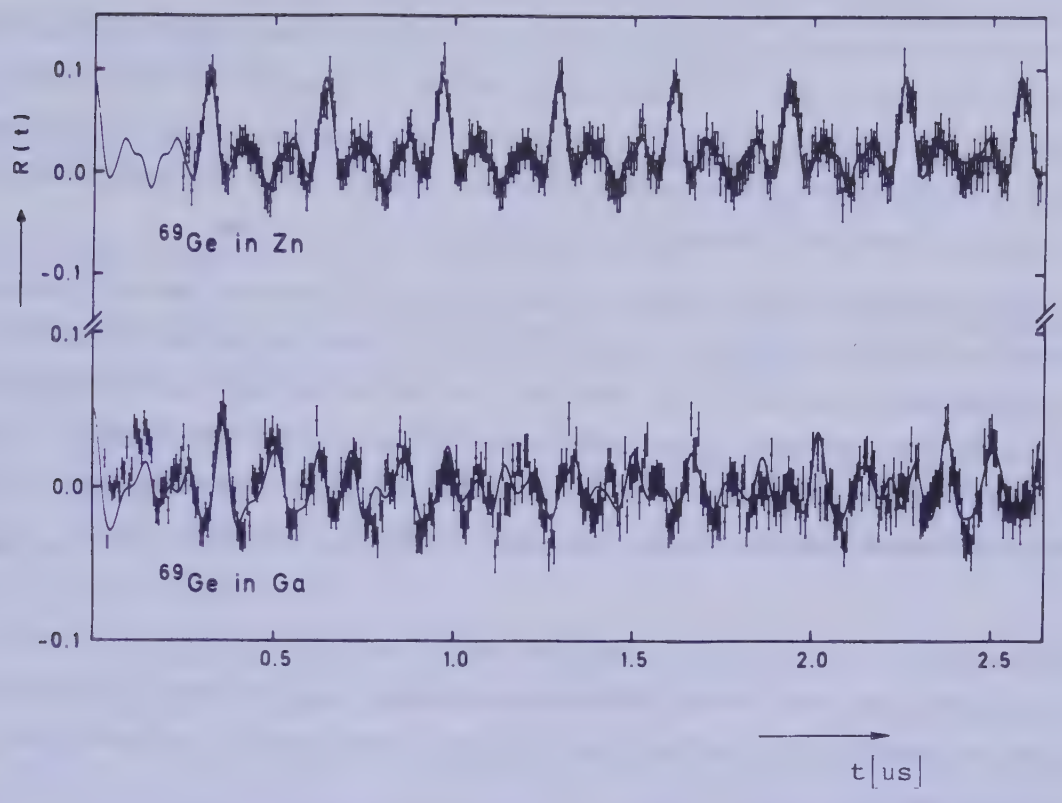


Abb. 5: Modulationsspektrum der Quadrupolwechselwirkung des $9/2^+$-Zustands von ^{69}Ge in polykristallinem Zink (360°C) und Gallium (-20°C). Die Anpassung in Zink erfolgte mit achsialsymmetrischem Feldgradienten, in Ga mit η=0.697. Beide Spektren sind ohne meßbare Relaxationserscheinungen.

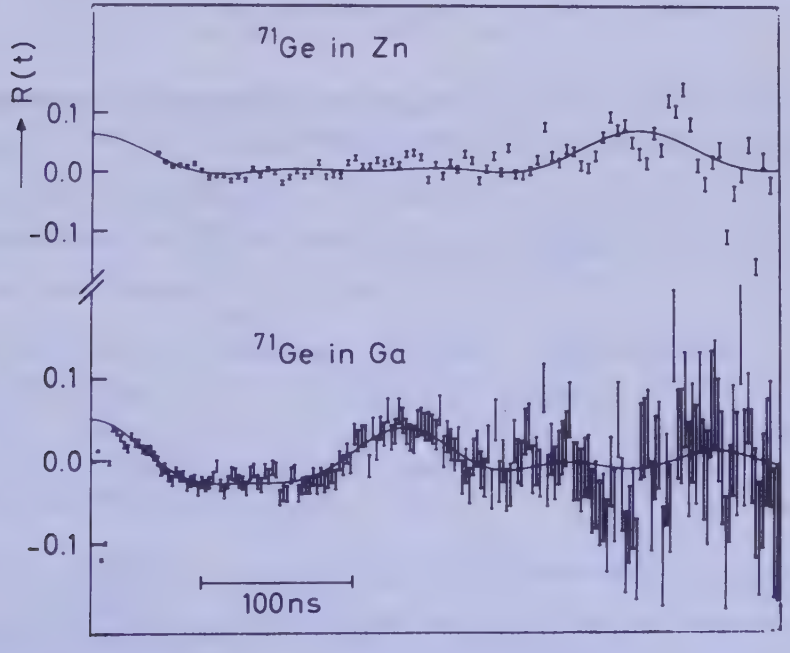


Abb. 6: Modulationsspektren der Quadrupolwechselwirkung des $5/2^-$-Zustands von ^{71}Ge. Targets und Temperaturen wie in Abb. 5. Für die Anpassung in Ga wurde der Wert η=0.697 aus Abb. 5 vorgegeben und nicht variiert.

Für die Messungen mit dem $5/2^-$-Zustand ergeben sich die großen Fehler wegen der kleinen Wechselwirkungsfrequenz, die nur eine ziemlich ungenaue Auswertung zuläßt. Für die Messung in der Ga-Matrix ist daher bei der Anpassung der experimentelle Wert von η für ^{69}Ge vorgegeben worden. Die Werte für den Term A_4 scheinen bei der Quadrupolwechselwirkung durch die Anpassung nicht genügend empfindlich berücksichtigt zu werden, aus der magnetischen Wechselwirkung für ^{67}Ge in einem flüssigen Zinktarget ergibt sich für $A_4 \approx 0.06$.

Sämtliche Spektren zeigen keine Relaxationserscheinungen; das 2.8 µsec-Niveau setzt wegen seiner langen Lebensdauer einen neuen Genauigkeitsmaßstab für die Frequenzschärfe und damit die Homogenität der Feldgradientenstrukturen, die bisher mit PAC/PAD-Methoden untersucht wurden. Die Anisotropie A_2 von ^{67}Ge läßt sich mit dem A_2-Term für die magnetische Wechselwirkung (externes Feld) in einem flüssigen Metalltarget vergleichen, daß Ergebnis liefert A_2(fest) $\approx$ A_2(flüssig).

Die Abwesenheit von Relaxationserscheinungen und der Anisotropievergleich von Festkörpertarget und Flüssigkeitstarget zeigen, daß Gitterschädigungen durch die Kernreaktionen keinen Einfluß auf die Ergebnisse ausüben und daß alle Ge-Kerne auf Gitterplätzen landen.

Bei dieser Aussage ist zu berücksichtigen, daß die Experimente bei Temperaturen in der Nähe des Schmelzpunktes T_m der Metalle stattfanden, für Zn bei ca. 6/7 T_m und für Ga bei ca. 5/6 T_m. Schlüsse daraus werden in Abschnitt 6. gezogen. Hier soll zunächst die ungestörte Quadrupolwechselwirkung diskutiert werden.

Tabelle 1: Übersicht über die experimentellen Ergebnisse der Quadrupolwechselwirkung von drei Ge-Kernzuständen in Zn und Ga

Sonde	^{67}Ge	^{69}Ge		^{71}Ge	
I^π	$9/2^+$	$9/2^+$		$5/2^-$	
E_γ [keV]	734	398		175	
$T_{1/2}$ [nsec]	70	2800		84	
Kernreaktion	(α,n)	(α,n)	(p,n)	(α,n)	(p,n)
Teilchenenergie [MeV]	13	13	6.5	13	6.5
Target	Zn(nat.)	^{66}Zn(anger.)	Ga(nat.)	Zn(nat.)	Ga(nat.)
Targettemperat. [K]	630	630	250	630	250
$\frac{e^2Qq}{h}$ [MHz]	86.8(8)	71.7(7)	70.8(4)	17(3)	15.5(3)
η	0.0	0.0	0.697(5)	0.0	(0.7)
A_2	+0.28(2)	+0.13(1)	+0.07(1)	+0.08(3)	+0.07(1)
A_4	0.0	-0.020(5)	0.0	0.0	0.0

a) Quadrupolkopplungsfrequenzen

Aus den gemessenen Frequenzen in Zn und Ga läßt sich das Verhältnis der Quadrupolmomente der drei Germaniumzustände bestimmen:

$$|Q(^{71}Ge, 5/2^-) : Q(^{69}Ge, 9/2^+) : Q(^{67}Ge, 9/2^+)| = 0.219 : 1 : 1.22$$

mit einer Genauigkeit von ca. 2% (siehe Tabelle 1).

Mit dem theoretischen Wert für das Moment in ^{69}Ge ($|Q| = 0.25$ b) (siehe Anhang) lassen sich die EFG für Ge in Zn und Ga ausrechnen:

$$|eq|(\text{Ge in Zn, T = 630 K}): \quad 11.8$$
$$|eq|(\text{Ge in Ga, T = 250 K}): \quad 11.8 \quad [10^{17}\,V/cm^2]$$

Ein Vergleich mit den EFG der reinen Metalle zeigt, daß die Ge-Sonden einen verstärkten EFG wahrnehmen:

$$|eq|(\text{Zn, T = 630 K}): \quad 8.2$$
$$|eq|(\text{Ga, T = 250 K}): \quad 4.7 \quad [10^{17}\,V/cm^2]$$

Die Daten der reinen Metalle sind aus den Tabellen des Abschnitts 5.2 vorweggenommen, dort werden ihre Ableitung und ihre Fehler diskutiert. Die Frage nach der Verstärkung der EFG an den Fremdatomen hängt von den nur theoretisch ermittelten Werten der Quadrupolmomente von Zn und Ge ab, und hat damit nur schwache Signifikanz. Die Größe der Verstärkung bis zu zweieinhalb (Ge in Ga) zeigt jedoch die Berechtigung der Verstärkungsannahme, denn das Quadrupolmoment des Ge ist sicher genauer als bis auf diesen Faktor bestimmt (Anhang).

Zwei Arbeiten beschäftigen sich bisher explizit mit der Frage der Veränderung des EFG an Fremdatomen in Nichtübergangsmetallen. Brandt et al.[6] und Bodenstedt et al.[5] untersuchen die Quadrupolwechselwirkung von ^{111}Cd in In und kommen zu dem Schluß, daß der EFG durch das In-Metall allein bestimmt wird (bis auf eine Korrektor für den veränderten Sternheimerfaktor).

Eine allgemeinere Behandlung dieses Problems wird ausgehend von den Meßwerten für die Ge-Sonden in Zn und Ga in Abschnitt 5. gegeben.

b) Die Symmetrie des EFG von Ge in Ga

Das Ga stellt mit seiner orthorhombischen Kristallstruktur einen Einzelfall unter den Metallen dar, seine Gitterzelle ist nicht achsialsymmetrisch. Experimentelle Ergebnisse von EFG-Messungen in achsialsymmetrischen Kristallen zeigen

im allgemeinen auch diese Symmetrie. Daraus läßt sich schließen, daß der Beitrag der Leitungslektronen zum EFG der Symmetrie des Gitters folgt. Diese Aussage scheint trivial zu sein, werden doch gerade die Leitungselektronen durch Wechselwirkung mit dem Kristallfeld räumlich orientiert.

Valic et al.[25] zeigen jedoch, daß die Aufteilung des EFG in einen ionischen Gitteranteil und einen Anteil der Leitungselektronen für Ga keine geeignete Parametrisierung darstellt. Die Hauptachsen für den berechneten EFG des ionischen Gitters fallen nicht mit den Hauptachsen des experimentell ermittelten EFG zusammen. Valic folgert daraus, daß der Leitungselektronenanteil zum EFG ein anderes Hauptachsensystem hat als der Anteil des Gitters, und ermittelt dieses System durch Bildung des Differenzentensors $\tilde{q}_{el} \equiv \tilde{q}_{diff} = \tilde{q}_{exp} - \tilde{q}_{lat}$. Das Ergebnis liefert die Hauptachse z dieses Differenzentensors in Richtung der Verbindungslinie zwischen zwei nächsten Gitternachbarn (Ga-Paaren), daraus läßt sich schließen, daß eine starke Wechselwirkung zwischen Ga-Paaren wirkt, möglicherweise ein Hinweis auf einen kovalenten Bindungsanteil im Ga-Metall.

Die spätere Messung des Knightshifttensors[26] in Ga macht diese Vorstellungen, die auf der Zerlegung in ein ionisches Gitter und die Leitungselektronen beruhen, fragwürdig. Der Knightshifttensor $\tilde{K}$ hat das gleiche Hauptachsensystem wie der experimentell ermittelte EFG, da aber der anisotrope Teil der Knightshift proportional zum Beitrag der Leitungselektronen an der Fermikante zum EFG ist, ist es "höchst unwahrscheinlich" (Zitat[26]), daß die Hauptachsen von Knightshifttensor $\tilde{K}$ und $\tilde{q}_{el}$ verschieden sind. Wahrscheinlicher ist, daß die Hauptachsen von $\tilde{K}$ auch die von $\tilde{q}_{el}$ sind, und damit auch die Hauptachsen des Gitteranteils zum EFG (aus Symmetriegründen).*

Diese Folgerung verletzt die Gültigkeit der einfachen Zerlegung in Gitteranteil und Leitungselektronenanteil, denn der Gitteranteil hatte ja in der Berechnung ein anderes Hauptachsensystem. Zumindest für das Metall Ga ist die Analyse in Abschnitt 5., die sich auf diese Zerlegung stützt, mit einigem Vorbehalt zu betrachten.

Die vorangehende Darstellung zeigt, wie komplex das Problem der Zusammensetzung des EFG aus verschiedenen Anteilen im Ga ist; mit der Frage der Hauptachsen

---

* Anmerkung:

Die Argumentation bezieht nur die Leitungselektronen an der Fermikante ein, der EFG kann aber von allen Leitungselektronen abhängen, siehe dazu die Abschnitte 2.1 und 5. Trotzdem sollte für die Leitungselektronen innerhalb des Fermivolumens die gleiche Folgerung gelten, die Hauptachsen von $\tilde{q}_{el}$ sollten nicht vom Impuls k abhängen.

ist auch das Problem des Asymmetrieparameters verknüpft, der ebenfalls von den Eigenschaften des Gitters und der Leitungselektronen abhängt und in bezug auf ein Hauptachsensystem angegeben wird. Die PAD-Messung kann nichts über die Hauptachsen aussagen, lediglich der Asymmetrieparameter η in diesem Fall für das Fremdatom Ge in Ga ist gemessen (0.697), der erheblich von dem Wert für reines Ga (0.171)[25] abweicht. Im Hinblick auf die komplizierte Struktur des EFG in Ga kann nur eine sehr vorläufige Diskussion der möglichen Ursachen gegeben werden:

Strahlenschäden infolge der in-beam Messung lassen sich als Erklärung mit einiger Sicherheit ausschließen, ein gleichzeitiges Auftreten von Relaxationserscheinungen sollte dabei beobachtbar sein. Eine zweite Möglichkeit liegt in der Verzerrung des Ga-Gitters um das Ge-Atom, das ein vom Ga-Atom verschiedenes Gittervolumen beansprucht. Die Beobachtung, daß in achsialsymmetrischen Metallen auch am Ort des Fremdatoms die Achsialsymmetrie erhalten bleibt, ist kein starkes Argument gegen diese Hypothese, denn die Bedingung, daß bei der Gitterverzerrung im achsialsymmetrischen Fall $V_{xx} = V_{yy}$ bleibt, ist sicherlich leichter erfüllt, als daß im nichtachsialsymmetrischen Metall $(V_{xx} - V_{yy})/V_{zz}$ konstant bleibt.

Die dritte, und wohl interessanteste Interpretationsmöglichkeit liegt in einer Veränderung der Symmetrie der Leitungselektronenstruktur. Der Hinweis von Valic[25] auf kovalente Bindungsanteile gibt da einen Ansatzpunkt, ein Fremdatom könnte den kovalenten (und damit richtungsabhängigen Charakter) der Ga-Bindung verändern. Im gegenwärtigen Verständnis des EFG bleibt das jedoch reine Spekulation.

Die EFG verschiedener Fremdatome in Ga könnten experimentelles Material zur Erforschung des Problems liefern, außerdem natürlich Messungen der anisotropen Knightshift an diesen Fremdatomen in Ga.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß sich keine einfache Parametrisierung des EFG in Ga angeben läßt, und das komplexe Zusammenwirken von Gitter- und Leitungselektronenanteil die Interpretation eines EFG an einem Fremdatom in dieser Matrix besonders schwierig macht. Der Asymmetrieparameter η läßt sich weder für reines Ga noch für das Ge-Fremdatom darin erklären.

5. Die elektrischen Feldgradienten an Fremdatomen in nichtkubischen Metallen mit s-p-Leitungselektronenbändern

Dieser Abschnitt soll darlegen, daß ein Fremdatom vornehmlich den Leitungselektronenanteil des EFG beeinflußt, 5.1 . Es werden dann Literaturdaten unter diesem Gesichtspunkt analysiert, 5.2 , und in Abschnitt 5.3 wird eine Modellvorstellung für den EFG im Rahmen der Ladungsabschirmtheorie beschrieben.

5.1 Veränderungen der elektrischen Feldgradienten reiner Metalle bei Einführung eines Fremdatoms

Anhand der Formel (2.2) für die Parametrisierung des EFG kann der mögliche Einfluß des Fremdatoms diskutiert werden. Mohapatra et al.[10] zeigen in einer Rechnung für den EFG in Cd, daß der Anteil der Leitungselektronen tatsächlich in der erforderlichen Größenordnung liegt, um die Differenz von errechnetem Gitteranteil q_{ion} und experimentell ermitteltem EFG zu erklären.

Was geschieht bei der Einführung eines Fremdatoms auf einen regulären Gitterplatz des Metalls?
Um den Einfluß des veränderten Sternheimerfaktors $(1 - \gamma_\infty)$ zu klären, braucht man

i) verläßliche Werte für die γ_∞ oder zumindest das Verhältnis $\gamma'_\infty/\gamma_\infty$ von Fremdatom zu Matrixatom und

ii) die relative Größe der Beiträge von q_{ion} und q_{el}.

Zu i): Vertraut man dem Konzept der ionischen Metallrümpfe, so ist γ_∞ eine wohlbestimmte Größe. Es existieren allerdings zumindest zwei verschiedene Rechnungsansätze, die erheblich differierende Werte liefern, und selbst Verhältnisse $\gamma'_\infty/\gamma_\infty$ für zwei verschiedene Ionen sind in den beiden Berechnungsschemata nicht gleich. Tabelle 2 zeigt die Werte $(1-\gamma_\infty)$ für die Metalle, die in der Analyse der EFG in Abschnitt 5.2 benötigt werden.

Zu ii): Die Ermittlung des relativen Beitrags von q_{ion} und q_{el} zum EFG hängt von γ_∞ (siehe i)), von dem Quadrupolmoment des Kernzustandes (denn q_{el} läßt sich nur als Differenz q_{exp} und q_{ion} ermitteln) und von den Vorzeichen der Beiträge q_{ion} und q_{el} ab. Besonders die Vorzeichen der Beiträge sind fast immer unbekannt, ein ungenaueres Maß für die Größe der Beiträge ist deshalb das Verhältnis $|q_{ion}/q_{exp}|$, das nur von γ_∞ und $|Q|$ abhängt. Dies Verhältnis liegt für die in 5.2 betrachteten Metalle unter Beachtung der Unsicherheiten von $|Q|$ und γ_∞ zwischen ca. 1:3 und 1:7.
Ist das Verhältnis $\gamma'_\infty/\gamma_\infty$ zwischen Fremdatom und Matrixatom nicht $\ll 1$ (bzw. $\gg 1$), so spielen die Sternheimerfaktoren für die Veränderung des EFG nur eine geringe Rolle.

Die Tabelle 2 zeigt, daß für Elemente der gleichen Periode die Sternheimerfaktoren ähnliche Größen haben, beim Übergang zu einer anderen Periode aber größere Unterschiede auftreten (Spalte a)). Bei den Werten der Spalte b) treten diese Periodeneffekte nicht so deutlich in Erscheinung. Die Veränderung des EFG durch γ_∞ bei der Einführung eines Fremdatoms beträgt jedoch immer nur einen Bruchteil des urprünglichen EFG.

Tabelle 2: Sternheimerfaktoren $(1-\gamma_\infty)$ für Ionen polyvalenter Metalle

Leitungselektr.-struktur	Element	$(1-\gamma_\infty)$ a)	b)
4s4p	Zn^{2+}	13.3	10[c]
	Ga^{3+}	10.9	11.5[d]
	Ge^{4+}	9.4	--
5s5p	Cd^{2+}	30.3	16[c]
	In^{3+}	|25|	12[c]
	Sn^{4+}	23.3	--
	Sb^{5+}	|20|	--
6s6p	Pb^{4+}	51.9	--

a) Daten von Feiock und Johnson[27]. Die Werte für In und Sb sind frei interpoliert.

b) Daten aus verschiedenen Rechnungen.

c) Das und Pomerantz[14]

d) Sternheimer 1966 (Zitat aus Sholl[28])

Eine Veränderung der lokalen Leitungselektronenstruktur in der Wigner-Seitz-Zelle des Fremdatoms, also ein verändertes q_{el}, kann jedoch wegen des stärkeren Einflusses auf den totalen EFG von großer Bedeutung sein. Es interessiert hierbei die Wirkung der Ladungsabschirmung im Innenraum des Fremdatoms (am Ort des Atomkerns), es muß also eine Methode zur Berechnung des EFG in nichtkubischen Metallen (Abschnitt 2.1) mit dem Abschirmproblem der Friedeltheorie verknüpft werden.

Der Faktor (1+δ) aus der Parametrisierung (2.2) sei noch erwähnt, hier handelt es sich um einen Verstärkungsfaktor von einigen Prozent von q_{lat}, etwaige Änderungen durch die Einführung eines Fremdatoms können vernachlässigt werden.

Aus der Abschätzung der relativen Größen von q_{ion} und q_{el} zeigt sich, daß mit dem Verhältnis

$$\left| {}^{A}q_{B} / {}^{A}q \right|$$

zu einem erheblichen Anteil die Veränderung des Leitungselektronenanteils q_{el} bei der Einführung eines Fremdatoms beschrieben wird:

$$\left| \frac{{}^{A}q_{B}}{{}^{A}q} \right| \simeq \left| \frac{{}^{A}q_{lat}(1-\gamma_\infty)_B + {}^{A}q_{el\,B}}{{}^{A}q_{lat}(1-\gamma_\infty)_A + {}^{A}q_{el}} \right| \approx \left| \frac{{}^{A}q_{el\,B}}{{}^{A}q_{el}} \right| \qquad (5.1)$$

dabei bezeichnet der Index A Eigenschaften der Matrix und der Index B Eigenschaften des Fremdatoms.

Eine Beschreibung der Veränderung der Leitungselektronenstruktur sollte sich durch eine Funktion von ΔZ (bzw. δZ) (siehe Abschnitt 2.2) geben lassen, vorausgesetzt, daß die Bandstruktur der Festkörper und andere vernachlässigte Effekte (z.B. die Sternheimerfaktoren) den Ladungsabschirmeffekt nicht total überdecken.

Der reine Gitterbeitrag q_{lat} wird stets als unabhängig von dem speziellen Sondenatom angenommen; diese Annahme ist sicher nicht vollständig korrekt, kann aber im Rahmen dieser Arbeit nicht anders behandelt werden.

5.2 Ermittlung elektrischer Feldgradienten an Fremdatomen aus Literaturdaten von Quadrupolkopplungskonstanten

In der Tabelle 3 sind die Kopplungskonstanten aus der Literatur für Fremdatome in den Metallen Zn, Ga, Cd, In, Sn und Sb zusammengestellt. Das Leitungsband dieser Metalle besteht aus s- und p-Elektronen, die Anzahl dieser Elektronen bestimmt die Wertigkeit Z_o. Die Fremdatome sind von ebensolcher elektronischer Struktur, was die Beschreibung der Leitungsbandeffekte dieser "verdünnten Legierungen" erleichtert.

Aus den Kopplungskonstanten wurde der EFG am Fremdatom bei der Temperatur T ermittelt. Die verwendeten Quadrupolmomente der Fremdatomkerne für diese Be-

rechnung sind in Tabelle 4 zusammen mit den Spins und den Halbwertszeiten der Kernzustände aufgeführt. Außerdem enthält Tabelle 3 die EFG der reinen Metalle, bezeichnet als A_{eq}. Die Ermittlung dieser EFG erfolgte mit Daten aus der Literatur, die in Tabelle 5 gezeigt sind. Die letzte Spalte von Tabelle 3 zeigt das Verhältnis

$$\left| A_{q\,B} / A_q \right|$$

bei gleicher Temperatur für beide EFG.

Tabelle 3: Elektrische Feldgradienten an Fremdatomen in polyvalenten Metallen

Wirtsgitter	Fremdatom	T [K]	$\left\|\frac{e^2Qq}{h}\right\|$ [MHz]	$\left\|A_{eq\,B}\right\|$ f) [10^{17}V/cm^2]	$\left\|A_{eq}\right\|$ g) [10^{17}V/cm^2]	$\left\|A_{q\,B} / A_q\right\|$ h)
Zn	^{69}Ge	630	71 a)	11.8	[8.2]	[1.4]
	^{111}Cd	RT	123 b)	6.4	[9.5]	[0.70]
Ga	^{69}Ge	250	71 a)	11.8	4.7	2.5(2)
	^{111}Cd	77	24 b)	1.2	4.8	0.25(2)
Cd	^{117}In	RT	143 b,c)	10.2	6.4	1.6(3)
	^{204}Pb	RT	118 b)	8.7	6.4	1.35(25)
In	^{111}Cd	RT	17 b,d,e)	0.9	1.4	0.65(5)
	^{204}Pb	RT	41 b)	3.0	1.4	2.15(15)
Sn	^{111}Cd	RT	36 b)	1.9	4.7	0.40(20)
	^{117}In	RT	62 b)	4.4	4.7	0.90(45)
	^{204}Pb	RT	71 b)	5.2	4.7	1.1(55)
Sb	^{111}Cd	RT	71 b)	3.7	5.4	0.7(1)
	^{204}Pb	RT	33 b)	2.5	5.4	0.45(7)

a) diese Arbeit
b) Ref. 30
c) Ref. 31
d) Ref. 5
e) Ref. 6
f) Berechnet mit den Quadrupolmomenten aus Tabelle 4; Fehler siehe Text.
g) Werte aus Tabelle 5, Fehlerangaben dort.
h) Fehlerangaben beinhalten nur die Fehler von A_{eq}, siehe Text, für Zn [ ] existiert kein exp. Q-Moment.

Die Literaturwerte sind zu den Werten dieser Tabelle gerundet.

Tabelle 4: Kerneigenschaften der analysierten Fremdatomsonden

Sonde	I^{π}	$T_{1/2}$ [nsec]	$\|Q\|$ [b]
^{69}Ge	$9/2^+$	2800	[0.25] a)
^{111}Cd	$5/2^+$	84	0.77(12) b)
^{117}In	$3/2^+$	60	0.58(6) c) 0.65(4) d)
^{204}Pb	4^+	260	[0.56] c)

a) diese Arbeit
b) Ref. 32
c) Ref. 30
d) Ref. 31

Die Quadrupolmomente in eckigen Klammern entstammen einer Abschätzung, siehe Text.

Tabelle 5: Elektrische Feldgradienten polyvalenter Metalle

Metall	Zn	Ga	Cd	In	Sn	Sb
Sonde	^{67}Zn	^{69}Ga	^{111}Cd	^{115}In	^{119}Sn	^{123}Sb
I^{π}	$9/2^+$	$3/2^-$	$5/2^+$	$9/2^+$	$3/2^+$	$7/2^+$
$\|Q\|$ [b]	[0.2] a)	0.19(1) b)	0.77(12) c)	0.86(5) d)	0.08(4) b)	0.68(10) e)
T[K]	630 RT	250	RT	RT	RT	RT
$\frac{e^2Qq}{h}$[MHz] 1)	39 f) 45 f)	22 g)	123 h)	30 i)	9 j)	91 k)
$A_{eq}[10^{17}V/cm^2]$ m)	[8.2] [9.5]	4.7(3)	6.4(10)	1.4(1)	4.7(24)	5.4(8)
Meßmethode	PAD	NQR/NMR	PAC	NQR	PAC	NQR

a) Aus Analyse dieser Arbeit
b) Ref. 33
c) Ref. 32
d) Ref. 31
e) Ref. 34
f) Ref. 35
g) Ref. 25
h) Ref. 36
i) Ref. 37
j) Ref. 38
k) Ref. 39
l) Die Literaturwerte sind zu den Werten dieser Tabelle gerundet
m) Die Fehler in dieser Zeile sind die Fehler der entsprechenden Quadrupolmomente

Das Quadrupolmoment in eckigen Klammern entstammt einer Abschätzung, siehe Text.

Die Quadrupolmomente enthalten im wesentlichen die Unsicherheiten für eine solche Analyse, wir geben deshalb einige Anmerkungen zu den verwendeten Daten:

i) Quadrupolmomente der Kernzustände für die Ermittlung der ^{A}eq (Tabelle 5):
Für Q(^{69}Ga, ^{115}In, ^{123}Sb) liegen experimentelle Werte vor, in Klammern sind die Fehler angegeben.
Q(^{67}Zn) stammt aus der Analyse dieser Arbeit (Anhang).
Q(^{111}Cd): Die in Abschnitt 5.3 beschriebene Modellvorstellung spricht gegen die Aussagen der Referenz 5, es wird deshalb das von Raghavan[31] angegebene Moment aus der Analyse von ionischen Cd-Verbindungen verwendet, der Wert scheint besser fundiert.
Q(^{119}Sn): Der Wert entstammt einer Berechnung des EFG in SnS und SnO[29], er ist mit einer großen Unsicherheit behaftet ($\pm$ 50%).

ii) Quadrupolmomente der Fremdatomkerne (Tabelle 4):
Q(^{69}Ge) stammt aus der Analyse dieser Arbeit (Anhang).
Q(^{111}Cd) ist schon unter i) besprochen.
Q(^{117}In): Experimentelles Ergebnis.
Q(^{204}Pb): Dieser Wert entstammt einer Abschätzung aus der Arbeit von Haas und Shirley[30], der Wert ist unsicher, da er einer Messung von ^{204}Pb in Hg entnommen ist. Der Abschnitt 5.3 gibt Hinweise auf die Zuverlässigkeit des Wertes.

In Tabelle 6 sind die effektiven Wertigkeitsdifferenzen δZ zwischen Fremdatom und Wirtsgitter berechnet. Die Atomvolumina V sind nach der Formel $V = A/\rho$ ermittelt, A ist das Atomgewicht und ρ die Dichte des entsprechenden Metalls.

Tabelle 6: Effektive Valenzdifferenz δZ zwischen Fremdatom und Wirtsgitter polyvalenter Metalle

Wirtsgitter	Z_o	Fremdatom	Z	σ [a]	δZ [b]
Zn	2	Ge	4	0.25	+1.40
		Cd	2		-0.50
Ga	3	Ge	4	0.47	+0.60
		Cd	2		-1.20
Cd	2	In	3	0.28	+0.70
		Pb	4		+1.50
In	3	Cd	2	0.45	-0.60
		Pb	4		+0.60
Sn	4	Cd	2	0.33	-1.50
		In	3		-0.90
		Pb	4		-0.30
Sb	5	Cd	2	0.33	-2.10
		Pb	4		-1.00

a) σ ist das Poisson-Verhältnis, Werte aus Ref. 40 .

b) $\delta Z = \Delta Z - Z_o \beta$, siehe Abschnitt 2.2 .

In den Abbildungen 7 und 8 sind Verhältnisse der EFG der Form

$$\left|{}^{A}q_{B}/{}^{A}q\right|$$

aufgetragen. Abb. 7 zeigt im linken Teil die Werte für ^{111}Cd in verschiedenen polyvalenten Metallen, im rechten Teil die Werte für ^{204}Pb. Wegen der geringen Wertigkeit von Cd (Z = 2) ergeben sich nur negative Werte für δZ, das höherwertige Blei (Z = 4) erzeugt sowohl negative als auch positive δZ. Die eingezeichneten Fehlerbalken kennzeichnen die Unsicherheiten der EFG der reinen Metalle (experimentelle Fehler der entsprechenden Quadrupolmomente), für die relative Lage der Verhältnisse aus einer einzigen Meßsonde (^{111}Cd bzw. ^{204}Pb) braucht deren unsicheres Quadrupolmoment nicht berücksichtigt zu werden. Verbindet man die gebildeten Verhältnisse, so bilden die Werte für ^{111}Cd eine Kurve mit Minimum und die für ^{204}Pb mit Maximum für ein bestimmtes δZ. Mit den Quadrupolmomenten aus Tabelle 5 ergibt sich absolut eine Abschwächung der EFG der reinen Metalle bei Messung mit der Cd-Sonde, dagegen eine Verstärkung der EFG bei Messung mit der Pb-Sonde für δZ > O und Abschwächung für δZ < O (in Sb). Dabei vorkommende Abschwächungs- bzw. Verstärkungsfaktoren bis zu zweieinhalb lassen es ausgeschlossen erscheinen, daß durch falsch bestimmte Quadrupolmomente der Effekt künstlich erzeugt wurde.

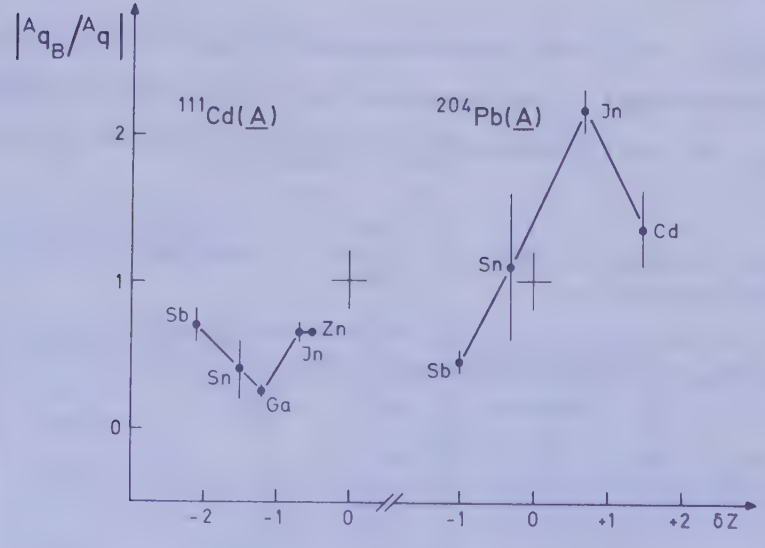


Abb. 7: Verhältnis des elektrischen Feldgradienten an Cd und Pb in polyvalenten Metallen (A) zum Feldgradienten der reinen Metalle. Die Fehler sind die von ^{A}eq (reine Metalle), für Zn gibt es keinen zuverlässigen experimentellen Wert des Q-Moments. Die Abszisse zeigt die Valenzdifferenz zwischen Fremdatom und Matrix.

In Abb. 8 sind sämtliche Werte der Tabelle 3 eingetragen, die Menge an experimentellem Material soll hier die Fehlerbalken für die einzelnen Punkte ersetzen, die wegen der zusätzlichen Unsicherheiten der Quadrupolmomente der Kernsonden nur schwer anzugeben sind. Der relative Kurvenverlauf für die verschiedenen Sonden ist wegen der Menge der eingezeichneten Werte nicht mehr zu verfolgen. Der Gesamtverlauf der Abb. 8 entspricht den Kurven in Abb. 7 .

Im nächsten Abschnitt soll eine nähere Deutung dieser Effekte versucht werden.

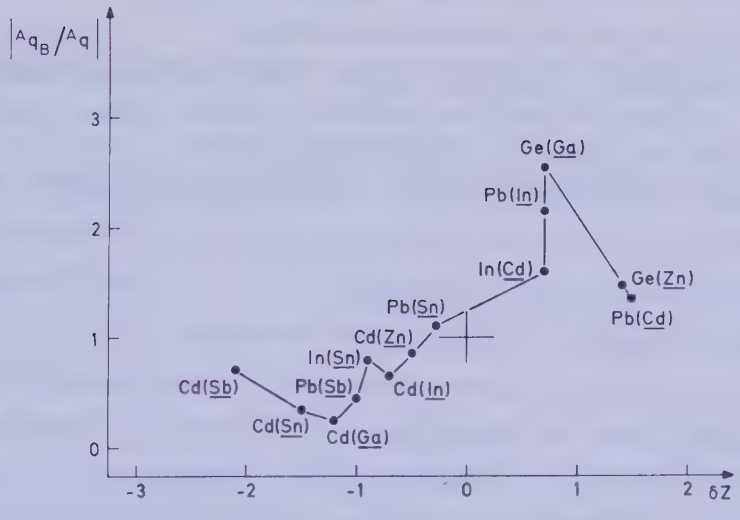


Abb. 8: Verhältnis des elektrischen Feldgradienten verschiedener Fremdatome in polyvalenten Metallen (A) zum Feldgradienten der reinen Metalle. Abszisse wie in Abb. 7.

5.3 Modellvorstellung für elektrische Feldgradienten an Fremdatomen im Rahmen der Theorie der Ladungsabschirmung

Wir benötigen jetzt eine nähere Kenntnis der Struktur der Abschirmladung innerhalb der Fremdatomzelle. Das Abschirmproblem wird zunächst im Rahmen (fast) freier Elektronen behandelt, dann wird der Einfluß des Gitterpotentials "zugelassen".

Die gesamte Abschirmladung δZ (bzw. ΔZ) wurde nach (2.5) durch die Summenregel angegeben, sie läßt sich auch schreiben als Summe über Abschirmladungen δZ_l, die von Elektronen in Drehimpulszuständen l bereitgestellt werden:

$$\delta Z = \frac{2}{\pi} \sum_l (2l+1)\,\delta_l = \sum_l \delta Z_l \quad . \tag{5.2}$$

Die Aufteilung der Abschirmladung in die verschiedenen Drehimpulszustände ist deshalb wichtig, weil die Drehimpulssymmetrie die Winkelverteilung bestimmt und damit unter Einwirkung des Kristallfeldes den EFG am Kernort.

Zur Frage der Struktur der Abschirmladung müssen folgende Probleme behandelt werden:

a) Aufteilung der Ladung auf die Drehimpulszustände l,

b) radiale Verteilung der Ladung um das Streuzentrum,

c) Abhängigkeit der Ladungsverteilung vom Impuls k der Leitungselektronen.

Zu a): Die Summe (5.2) besteht nur aus den ersten Gliedern l = 0, 1, 2, ..., höhere Streuphasen verschwinden. Eine übliche Annahme besteht darin, bei den Metallen mit s- und p-Leitungselektronen nur Streuung dieser Drehimpulskomponenten zu berücksichtigen (l = 0, 1), bei Übergangsmetallen der 3d-Schale dagegen im wesentlichen d-Streuung (l = 2), diese Annahmen haben sich in vielen Experimenten bekräftigen lassen. Eine Diskussion darüber findet sich bei Rigney et al.[41], dort wird außerdem gefolgert, daß bei höherwertigen Gastgittern und Fremdatomen (Z ≥ 2) die s-Elektronen nicht zum Streuprozeß beitragen, da ihre maximal erlaubte Anzahl von zwei pro Atom bereits durch das Leitungsband des ungestörten Gastgitters zur Verfügung gestellt wird. Die Abschirmung des Fremdatoms in polyvalenten Metallen geschieht deshalb überwiegend in p-Zuständen. Damit vereinfacht sich die Summe (5.2) zu

$$\delta Z = 6/\pi\, \delta_1 \tag{5.3}$$

d.h. reine p-Streuung.

Zu b): Da in einem Metall keine langreichweitigen Potentialdifferenzen existieren dürfen, wird das Fremdatompotential etwa innerhalb einer Wigner-Seitz-Zelle abgeschirmt. Rechnungen mit einem sphärischen Kastenpotential[42] zeigen, daß für realistische Potentialparameter diese Bedingung

zu erfüllen ist. Für eine genaue Angabe der Radialverteilung der Abschirmladung innerhalb der Fremdatomzelle sind allerdings Modellpotentiale sicher nur eine recht grobe Näherung, besser müßte dieses Problem im Rahmen selbstkonsistenter Potentiale gelöst werden. Wir werden später eine einfache Annahme für die Radialverteilung machen.

Zu c): Die Abhängigkeit der Ladungsverteilung vom Impuls k der Leitungselektronen kann durch die Streuphasen als Funktion von k beschrieben werden. Die Ableitung der Streuphasen nach k, $d\delta_l/dk$, ist proportional zur Dichte N_l der durch das Fremdatom zusätzlich eingeführten l-Wellenzustände und damit proportional zur Abschirmladung in der Nähe des Defekts für Impulse in der Nähe von k[43,44]:

$$N_\ell(k) = \frac{2}{\pi}(2\ell+1)\,d\delta_\ell/dk \qquad (5.4)$$

Damit haben wir einen Ausdruck, der eine Aussage über die Beiträge der Leitungselektronen verschiedener Energie zur Streuung macht.

Einige Skizzen sollen schematisch die Streutheorie veranschaulichen (Abb. 9).

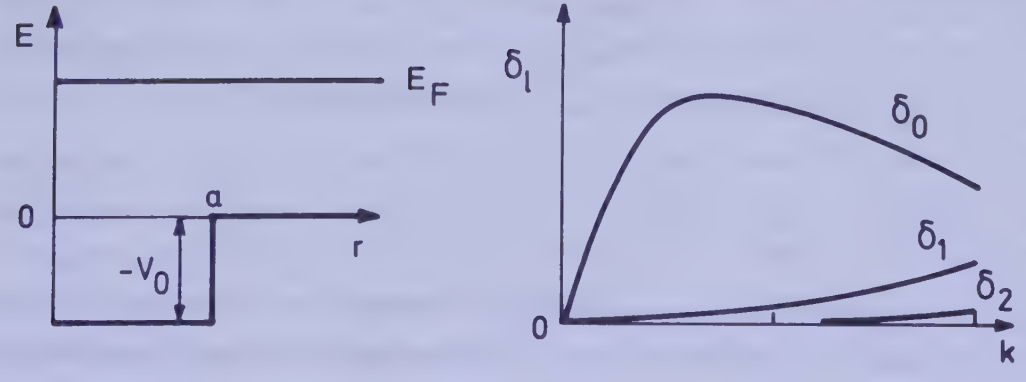


Abb. 9: Sphärisch - symmetrisches Streupotential der Tiefe $-V_o$ und Breite a (links);

Phasenverschiebungen δ_l als Funktion des Elektronenimpulses k für $\Delta Z = 1$ in einer einwertigen Matrix (Cd in Ag) (rechts); nach Ref. 42.

Um im Rahmen dieser Arbeit eine Beschreibung der Wirkung der Ladungsabschirmung auf den EFG geben zu können, wird ein einfacher analytischer Ausdruck für den EFG in reinen Metallen gebraucht. Die Einbeziehung aller Elektronenenergien (Fermi-Volumeneffekt) liefert keinen einfachen Ausdruck für den EFG, die Einbeziehung der Abschirmladung in dieses Modell verlangt explizite Wellenfunktionen der Leitungselektronen in der Wigner-Seitz-Zelle des Fremdatoms, derartige Rechnungen existieren nicht.

Der Ansatz von Watson[12] für Elektronen an der Fermioberfläche gibt jedoch einen geschlossenen Ausdruck für den EFG: Der Quadrupolterm des Kristallfeldpotentials induziert einen EFG der Leitungselektronen, dessen Hauptanteil sich schreiben läßt als

$$eq = 2e^2 q_{flat}\, n(E_F) \sum_i f_i \langle r^2\rangle_i \langle r^{-3}\rangle_i \left(\langle P_2^0(\cos\theta)\rangle_i\right)^2 \qquad (5.5)$$

dabei ist $n(E_F)$ die Dichte der Zustände an der Fermikante, $\langle r^2\rangle_i$ und $\langle r^{-3}\rangle_i$ sind Erwartungswerte der Elektronenradialverteilung, f_i ist der Wichtungsfaktor für die Elektronen mit der Orbitalsymmetrie i, $\sum_i f_i = 1$.

In diesem Ansatz ist der EFG linear von der Zustandsdichte der Leitungselektronen an der Fermikante abhängig. Die Beschränkung auf k_F macht eine Berücksichtigung der Ladungsabschirmung möglich.

In einer Abschätzung des Ausdrucks (5.5) für p-Elektronenmetalle läßt Watson nur die p-Orbitale zu. Dann ist in grober Näherung $f_i = 1/3$ für jeden p-Zustand p_x, p_y, p_z. Der hohe Anteil der p-Elektronen an der Fermikante läßt sich z.B. an der von Valic[26] abgeschätzten Wellenfunktion für Ga zeigen:

$$\psi_{k_F} = 0.58\,\psi_s + 0.60\,\psi_{p_x} + 0.55\,\psi_{p_y} + 0.29\,\psi_{p_z} \qquad (5.6)$$

d.h. die Wahrscheinlichkeit für p-Zustände $|\psi^p_{k_F}|^2$ beträgt ca. 65%. Die weiteren Annahmen in der Rechnung von Watson brauchen hier nicht diskutiert zu werden, da die Autoren keinen Anspruch auf quantitative Richtigkeit ihrer Rechnung erheben. Das Ergebnis ihrer Rechnung zeigt jedoch, daß die Fermielektronen für den EFG in p-Elektronenmetallen von großer Bedeutung sind.

Mit folgenden Annahmen läßt sich jetzt direkt der Effekt des Fremdatoms auf den EFG in (5.5) einführen: Alle Faktoren bis auf $n(E_F)$ bleiben konstant. Für die Radialintegrale $\langle r^2\rangle_i$ und $\langle r^{-3}\rangle_i$ ist dies sicher eine grobe Näherung, ent-

spricht aber qualitativen Vorstellungen, wie sie von Rigney[41] diskutiert werden. Die Beschränkung auf p-Orbitale bei Watson kommt den Annahmen der reinen p-Wellenstreuung bei der Abschirmung des Fremdatoms in polyvalenten Metallen entgegen.

Dann ist nur die veränderte Zustandsdichte an der Fermikante (5.4) für den Unterschied zwischen $^{A}(eq)_{B}$ und $^{A}(eq)$ verantwortlich, die totale Zustandsdichte lautet:

$$n^{tot}(E_F) = n(E_F) + \frac{6}{\pi} \frac{d\delta_1}{dk}(k_F) \qquad (5.7)$$

Aus (5.1), (5.3), (5.4), (5.5) und (5.7) ergibt sich somit

$$\left| {}^{A}q_B / {}^{A}q \right| \approx \frac{n^{tot}(E_F)}{n(E_F)} = 1 + \frac{\frac{6}{\pi} d\delta_1/dk(k_F)}{n(E_F)} \qquad (5.8)$$

und daher eine Verstärkung bzw. Abschwächung des EFG, abhängig vom Vorzeichen der Ableitung $d\delta_1/dk(k_F)$.

Das Vorzeichen des EFG am Fremdatom würde also dem Vorzeichen in der reinen Matrix entsprechen (die totale Zustandsdichte ist eine positive Größe), solange nicht q_{ion} dominierend wird.

A priori-Rechnungen mit einem Modellpotential zur Ermittlung von $d\delta_1/dk(k_F)$ sind sicherlich für quantitative Studien kaum geeignet, besser sind empirische Daten aus physikalischen Messungen, die von den benötigten Parametern abhängen.

In einer Studie von Rigert[43] über den Riesendiamagnetismus von Fremdatomen in Alkalimetallen und die"spin-flip-Streuung" von Na-Leitungslektronen an diesen Fremdatomen wird diesen beiden Prozessen die Dichte der Fremdatom-p-Zustände (5.4) an der unteren Leitungsbandkante ($k \approx 0$) bzw. der Fermikante (k_F) zugeordnet. Damit werden zusammenhängend zwei physikalische Prozesse verglichen, die die Ableitungen der p-Phasenverschiebungen an zwei verschiedenen Punkten des k-Raumes messen. Rigert[43] konstruiert für die Fremdatome Ag, Cd, In, Sn, Sb, Te und I (Z = 0 bis 6 in bezug auf das Wirtsmetall Na) die Phasenverschiebungen, die mit seinen Meßergebnissen verträglich sind (also keine a priori-Rechnung mit vorgegebenem Streupotential). Die Abb. 10 zeigt diese Phasenverschiebungen. Die Struktur des Problems ist so allgemein gültig, daß wir zunächst eine kurze Analyse der Abb. 10 geben wollen.

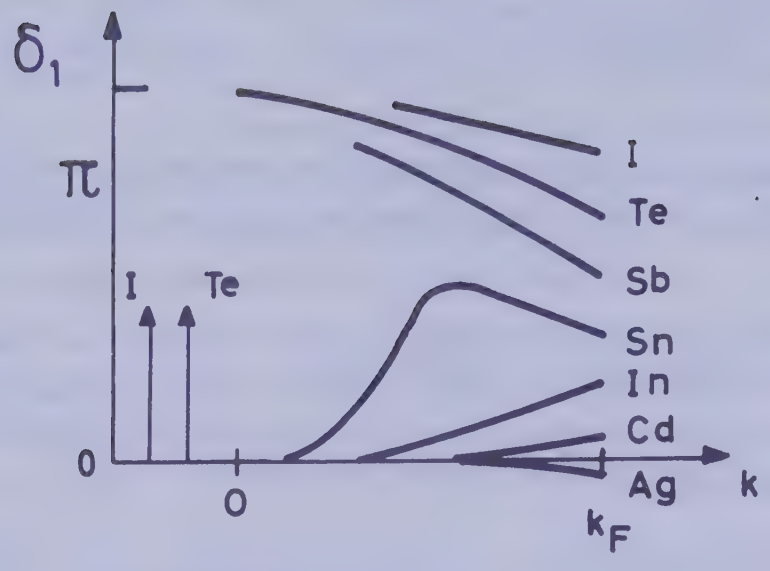


Abb. 10: Hypothetische p-Wellen Phasenverschiebungen für Fremdatome in Na (nach Ref. 43).

An der Fermikante muß wegen (5.3) die Phasenverschiebung pro ΔZ-Einheit um 30° zunehmen,

$$\delta_1 / \Delta Z = \pi/6 \tag{5.9}$$

Für das allgemeine Verhalten $\delta_1(k)$ lassen sich Schlüsse aus der p-Wellenstreuung an einem sphärischen Rechteckpotential ziehen:

Der exakte Ausdruck für die Streuphase δ_1 heißt[45]:

$$\sin \delta_1(k) = \frac{2m}{\hbar^2} \int_0^\infty j_1(kr)\, V(r)\, y_1(r)\, r\, dr \tag{5.10}$$

mit m : Masse des gestreuten Teilchens

V(r): Streupotential

j_1 : sphärische Besselfunktion

y_1 : exakte Wellenfunktion des gestreuten Teilchens

In Bornscher Näherung wird daraus:

$$\delta_1(k) = \frac{2m}{\hbar^2 k} \int_0^\infty V(r) \left\{ k r\, j_1(kr) \right\}^2 dr \tag{5.11}$$

und mit einem Rechteckpotential $V(r) = \pm V_o$ (für $r < a$)

$$\delta_1(k) \approx -\frac{2m}{\hbar^2 k}(\pm V_0)\int_0^a \{kr j_1(kr)\}^2 dr \qquad (5.12)$$

Man sieht, daß das Vorzeichen von V_o das von $\delta_1(k)$ bestimmt

$$\operatorname{sign} \delta_1(k) = (-1)\operatorname{sign} V_0 \qquad (5.13)$$

und daß in dieser Näherung

$$\delta_1 \sim V_0 \qquad (5.14)$$

für alle k ist.

Man kann aus der Abb. 10 entnehmen, daß für Cd und In die Bedingung (5.14) näherungsweise erfüllt ist. (Die Bornsche Näherung läßt sich im allgemeinen verwenden, wenn $\delta \ll \pi/2$ ist)[46].

Die k-Abhängigkeit der $\delta_1(\Delta Z > 0)$ läßt sich wie folgt verstehen[47]: Die Funktion $krj_1(kr)$ wächst in der Nähe des Nullpunktes wie $(kr)^2$, damit wächst (5.12) wie k^3, der Wendepunkt der Funktion liegt bei $kr = \sqrt{1(1+1)} = \sqrt{2}$. In der Abb. 10 wird für Cd und In der Wendepunkt offensichtlich nicht erreicht, aber bereits für Sn. Für Cd und In gilt damit $d\delta_1/dk > 0$ für alle k.

Die Phasenverschiebungen für stärkere Streupotentiale (Sn, ...) können nicht in der Näherung (5.11) erklärt werden. Für $\Delta Z = 3$ (Sn) ergibt sich ein Resonanzzustand (virtuelles Niveau), d.h. innerhalb eines schmalen Bereichs Δk wird bereits soviel Abschirmladung bereitgestellt, daß zur Erfüllung der Summenregel (5.3) die Ableitung $d\delta_1/dk$ für größere k als die Resonanzregion Null wird oder sogar negativ werden muß, d.h. Leitungselektronen dieser Energie abgestoßen werden. Für noch stärkere negative Potentiale (Sb, Te, I) können sich gebundene p-Zustände unterhalb der Leitungsbandkante $k = 0$ ergeben, die daraus folgende Ladungsabschirmung kann dann stärker sein als das ΔZ erforderte, und zum Ausgleich müssen entsprechend Leitungselektronen abgestoßen werden ($\frac{d\delta_1}{dk} < 0$). Ein Verständnis dieses "Konfigurationsüberganges" zwischen gebundenen Zuständen und Streuzuständen kann man sich mithilfe der Friedel-Summenregel verschaffen.

Beispiel Te in Na ($\Delta Z = +5$):

In einem p-Zustand unterhalb der Leitungsbandkante können 6 Elektronen gebunden werden. Da ΔZ aber nur +5 ist, ergibt sich damit eine negative Ionen-

rumpfladung des Te(-1), die durch Abstoßung von Leitungselektronen wieder ausgeglichen wird. Aus der Summenregel wird dann

$$\Delta Z = +5 = 6/\pi\, \delta_1(k_F) \longrightarrow 5-6 = 6/\pi\,(\delta_1(k_F) - \pi)$$

$$\rightsquigarrow \delta_1(k_F) = 5/6\,\pi \qquad (5.15)$$

(auf der rechten Seite der rechten Gleichung wurde zur Erhaltung der Selbstkonsistenz die Phase $n\pi$ subtrahiert, n = 6 ist die Anzahl der gebundenen Elektronen)

Es ergibt sich trotz negativem ΔZ eine positive Streuphase $<\pi$ bei k_F, für $k = 0$ muß für den gebundenen Zustand $\delta_1(0) = \pi$ sein[48], also nimmt $\delta_1(k)$ mit k ab.

Für I in Na ($\Delta Z = +6$) folgt aus der gleichen Überlegung:

$$\Delta Z = +6 = 6/\pi\, \delta_1(k_F) \longrightarrow 6-6 = 6/\pi\,(\delta_1(k_F) - \pi)$$

$$\rightsquigarrow \delta_1(k_F) = \pi \qquad (5.16)$$

Es werden gerade so viel Elektronen gebunden, wie die Differenz ΔZ ausmacht, damit wird $\delta_1(k) = \text{const.} = \pi$ (die Berücksichtigung des Volumeneffekts führt zu einem $\delta Z < \Delta Z$, und aus $\delta_1 = \text{const.}$ wird eine schwach abfallende Funktion mit k, Abb. 10).

An der Fermikante ergeben sich für die Fremdatome Sn bis I negative Ableitungen $d\delta_1/dk(k_F)$.

Damit haben wir für positive $\Delta Z(\delta Z)$ einen vollständigen Satz von Ableitungen der Phasenverschiebungen und mit (5.4) die Zustandsdichten an der Fermikante, die durch das Fremdatom zusätzlich eingeführt wurden. Postuliert man, daß das Fremdatompotential als Funktion von Wirtsgitter und Fremdatom nur über die Differenz $\Delta Z = Z - Z_o$ (bzw. δZ) festgelegt wird, so lassen sich die Zustandsdichten auch für die polyvalenten Metalle und ihre Fremdatome darin verwenden. Eine gewisse Verschiebung des Verlaufs der Ableitungen $d\delta_1/dk(k_F)$ als Funktion von ΔZ zwischen der Abb. 10 und dem Fremdatomproblem dieser Arbeit besteht darin, daß Na ($Z_o = 1$) nur ein s-Elektron in das Leitungsband gibt. Dadurch dürfte für kleine ΔZ die Ladungsabschirmung auch durch s-Elektronen mitbewirkt werden (siehe Abschnitt 2.3), und die p-Streuung etwas schwächer sein als in den poly-

valenten Metallen der Quadrupoluntersuchung, bei denen praktisch nur p-Streuung auftritt (weil Z_o, $Z \geq 2$ für alle beteiligten Metalle). Folglich ist hier das effektive p-Streupotential stärker, und der Übergang von positiven zu negativen Ableitungen $d\delta_1/dk(k_F)$ müßte zu kleinerem ΔZ verschoben sein.

Die ganze Schilderung der p-Wellen Ladungsabschirmung läßt sich als p-Wellen Resonanzabschirmung bezeichnen. Dieser Begriff bringt zum Ausdruck, daß die Phasenverschiebungskurve eines echten Resonanzzustands (Sn in Na) durch Variation des Fremdatompotentials punktweise (an der Fermikante) abgetastet wird. Ein solcher Resonanzprozeß wurde erstmalig von Friedel für den Verlauf des Restwiderstandes von Übergangsmetallen in Al beschrieben (d-Wellenresonanz)[2].

Für die EFG-Analyse werden auch die Phasenverschiebungen für $\Delta Z < 0$ gebraucht (z.B. für Cd in Metallen mit $Z_o > 2$). Im Bereich der Gültigkeit von (5.12) ändert sich beim Ersetzen von $-V_o$ durch $+V_o$ lediglich das Vorzeichen von δ_1, damit lassen sich in Abb. 10 die Kurven für Cd und In einfach mit umgekehrtem Vorzeichen darstellen, und wir erhalten die entsprechenden Kurven für $\Delta Z = -1, -2$. (Ag in Na aus der Abb. 10 entspricht dieser Abschätzung, hier ist $\Delta Z = 0$ aber $-1 < \delta Z < 0$). Bis zum Wert $\Delta Z = -2$ ergibt sich für alle k eine Abstoßung der Leitungselektronen.

Die Abb. 11 gibt den qualitativen Verlauf der diskutierten Ableitungen als Funktion von δZ an.

Für $\Delta Z < -2$ läßt sich nach Abb. 10 die Bornsche Näherung nicht weiter verwenden, die Lösung für das Streuproblem bei abstoßendem Potential ist nicht einfach spiegelsymmetrisch zur Lösung bei attraktivem Potential. Ein physikalisches Argument zur Fortsetzung der Funktion in Abb. 11 zu negativeren Werten ΔZ könnte lauten, daß für sehr starke abstoßende Potentiale gebundene Zustände des Fremdatoms so stark angehoben werden, daß sie in das Leitungsband fallen, damit einen zu stark positiven Ionenrumpf schaffen und daraufhin Leitungselektronen zur Abschirmung heranziehen. Das würde dem Bild eines negativen p-Resonanzzustandes entsprechen.

Die Übergänge zwischen gebundenen Elektronen und Leitungselektronen beeinflussen auch die Sternheimerfaktoren γ_∞, die ja den Einfluß der Rumpfelektronen auf den EFG beschreiben; dieser Effekt wird aber nach der Folgerung in Abschnitt 5.1 vernachlässigt.

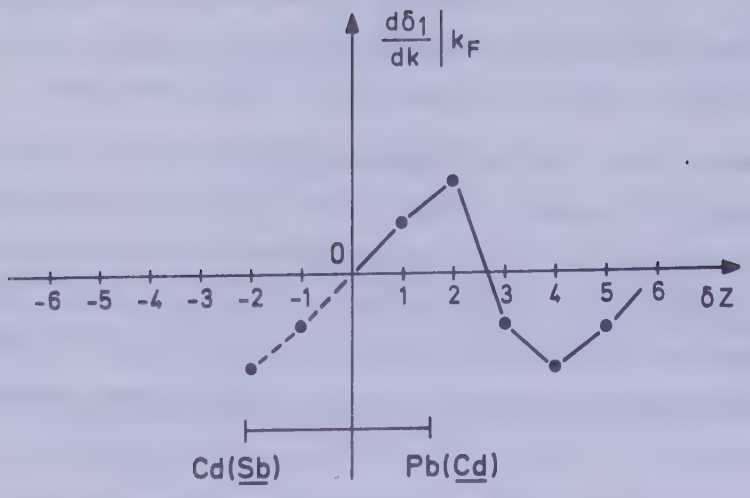


Abb. 11: Schematische Darstellung der Ableitung der Phasenverschiebung δ_1 an der Fermikante als Funktion von δZ aus der Abb. 10. Cd(Sb) bzw. Pb(Cd) geben das minimale bzw. maximale δZ an, für das experimentelle Werte aus Abb. 8 vorliegen. Zum Verlauf für $\delta Z < 0$ siehe Text.

Der Vergleich der experimentellen Daten (Abb. 7, 8) mit der Abb. 11 zeigt, daß mit dem beschriebenen Ansatz eine Interpretation der EFG an Fremdatomen in polyvalenten Metallen möglich ist.

Die Verstärkung bzw. Abschwächung der EFG an Fremdatomen gegenüber den Werten in den reinen Metallen impliziert nach (5.8) eine Veränderung der Zustandsdichte $n(E_F)$ um eben diesen Faktor. Allerdings können Veränderungen der Radialfunktionen in (5.5) mit zu Veränderungen des EFG beitragen, die Annahme ihrer Konstanz bei Einführung eines Fremdatoms ist sicherlich nicht streng erfüllt. Daß die Beschränkung auf Elektronen der Energie E_F die Veränderung der EFG an Fremdatomen relativ zur reinen Matrix beschreiben kann, stellt sicher einen starken Hinweis für die Wichtigkeit des Beitrags dieser Elektronen zum EFG dar. Wie weit andere Teile des Fermi-Volumens beim Zustandekommen des EFG an Fremdatomen beteiligt sind, läßt sich gegenwärtig nicht beurteilen, möglicherweise bieten die Messungen der EFG an Fremdatomen einen experimentellen Zugang zur Lösung der allgemeinen Frage über die Beiträge verschiedener Teile des Fermi-Volumens zum EFG auch in reinen Metallen. Die extrem geringe Zustandsdichte der Fermielektronen in Sb^{11} sollte eigentlich gegen eine Interpretation des EFG mit Hilfe dieser Elektronen sprechen, dem Sb sollte bei weiteren Experimenten besondere Aufmerksamkeit zukommen.

Von besonderem Interesse ist natürlich im Rahmen dieser Arbeit die genaue experimentelle Bestimmung des Verlaufs der Funktion in Abb. 11 für sehr grosse bzw. sehr kleine Werte für δZ. Dafür wären systematische Untersuchungen mit Sonden sehr großer bzw. sehr kleiner Wertigkeit nötig (z.B. As mit Z = 5 und Cu (Z = 1)). Aus dem Gesamtverlauf ließe sich dann auch das Maximum bzw. Minimum eindeutig bestimmen und damit Genaueres über die Art der Phasenverschiebungsstruktur aussagen.

Zum Schluß sei noch eine Bemerkung zu der Analyse des Cd-In Systems von Bodenstedt et al.[5] angefügt. Nimmt man an, daß in (2.2) der Leitungselektronenanteil q_{el} durch den Gitteranteil q_{lat} induziert wird, so läßt sich schreiben

$$q_{el} = q_{lat} \cdot \alpha_{el} \tag{5.17}$$

und somit

$$q = q_{lat}\{(1-\gamma_\infty)(1+\delta) + \alpha_{el}\} \tag{5.18}$$

Bodenstedt drückt α_{el} durch eine Erhöhung der effektiven Gitterladung $(1 + \delta)$ aus und kommt dadurch zu dem Ansatz

$$q = q_{lat}\{(1-\gamma_\infty)(1+\delta')\} \tag{5.19}$$

(δ' nur von der Matrix abhängig)

Dadurch wird der Sternheimerfaktor des jeweiligen Sondenatoms proportional zum resultierenden Feldgradienten, und

$$\left|{}^A q_B\right| / \left|{}^A q\right| = \frac{(1-\gamma_\infty)_B}{(1-\gamma_\infty)_A} \tag{5.20}$$

Mit dieser Beziehung wird dann das Quadrupolmoment des ^{111}Cd zu 0.44b bestimmt. Die Formel (5.20) steht im Gegensatz zu der Analyse der vorliegenden Arbeit, hier wird angenommen, daß (5.18) gilt: $\alpha_{el} \gg (1+\delta)$ und α_{el} abhängig vom jeweiligen Fremdatom und von der Matrix, $A_{(\alpha_{el})_B}$, außerdem $\alpha_{el} \gg (1-\gamma_\infty)$.

Daraus resultiert dann gerade die Beziehung (5.1), siehe die Diskussion dazu.

Das von Bodenstedt verwendete Argument, daß die ähnliche Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung von Matrix und Fremdatom in der Matrix die Ersetzung von ${}^{A}(\alpha_{el})_{B}$ durch $(1+\delta)$ gestattet (Abwesenheit lokaler Beiträge), ist lediglich plausibel, aber doch physikalisch nicht erwiesen.

6. "Störwechselwirkungen" - Quadrupolwechselwirkung in symmetrie- und ladungsgestörten Metallgittern

Dieser Abschnitt befaßt sich mit der Quadrupolwechselwirkung, die von Störungen des Metallgitters herrührt. Der Ursprung der Störungen kann in der Strahlenschädigung durch Kernreaktionen und in dem Einbau von Fremdatomen (Legierungen) liegen. Die Störwechselwirkung wird gemessen mit Kernsonden, die sich auf Gitterplätzen außerhalb des Störzentrums befinden.

Abschnitt 6.1 behandelt die auftretenden EFG und die festkörperphysikalischen Aspekte der Strahlenschädigung von Metallen im Hinblick auf deren Messung mit den Methoden gestörter γ-Winkelverteilungen. In Abschnitt 6.2 werden Experimente behandelt, die mit diesen Methoden durchgeführt wurden.

Die verdünnten Legierungen werden in Analogie zu den auftretenden Strahlenschädigungen nach Kernreaktionen betrachtet (Ladungs- und Symmetriestörung), um aus kontrollierbaren Parametern der Legierung Aussagen über die Strahlenschädigung zu gewinnen.

6.1 Grundlagen zur Messung der Symmetrie- und Ladungsstörung in Metallen

Die in diesem Abschnitt zu behandelnden "Störwechselwirkungen" unterscheiden sich von der "reinen Quadrupolwechselwirkung", die den Inhalt der Abschnitte 4. und 5. bildet, durch folgenden Aspekt: die "reine Wechselwirkung" läßt sich durch eine kleine Anzahl diskreter Frequenzen beschreiben, die an jedem Sondenort gleich sind, bewirkt durch die Symmetrieeigenschaften eines idealen Kristalls; die "Störwechselwirkungen" bestehen dagegen aus einer Überlagerung oft sehr vieler (im Grenzfall kontinuierlich verteilter) Frequenzen, die an jedem Sondenort verschieden sein können. Dadurch verschwindet der periodische oder zumindest oszillatorische Charakter der Störfunktion $G_k(t)$. Außerdem kann man noch eine Unterteilung in statische und zeitabhängige Störwechselwirkung vornehmen.

Die Unterschiedlichkeit der Frequenzen an beliebigen Orten des Kristalls ist Ausdruck der Verteilung der Symmetrie- bzw. Ladungsstörzentren.

Zur Beschreibung der Störwechselwirkung braucht man also eine Wahrscheinlichkeitsverteilung der auftretenden EFG, der Ansatz für die Ortsabhängigkeit der vom Störzentrum ausgehenden EFG ist der aus dem Friedelmodell, (2.8).

Bei der Erzeugung der Störzentren durch Strahlenschädigung ist nicht unbedingt mit einer statistischen Verteilung der Störzentren über das beschossene Kristallvolumen zu rechnen; ob der angeregte Probenkern eine mittlere Kristallstörungsdichte oder eine Stördichte, die charakteristisch für eine begrenzte, "mikroskopische" Sondenumgebung ist, wahrnimmt, gehört zu den wichtigen Problemen dieses Abschnitts. Bei bestimmten Arten von verdünnten Legierungen ist es sicher, daß eine rein statistische Verteilung der Fremdatome vorliegt, aus dem Ergebnis für $G_k(t)$ in solchen Legierungen lassen sich dann Schlüsse auf die Störstellendichte der Sondenumgebung in strahlengeschädigten Gittern ziehen, wobei als Unsicherheit die nicht genau bekannte Stärke der EFG in (2.8) verbleibt.

Da die Strahlenschädigung prinzipiell bei jeder "in-beam"-Messung vorhanden ist, geht es in diesem Abschnitt 6. besonders darum, die Auswirkungen auf verschiedene Formen der Messung der γ-Winkelverteilung zu studieren, z.B. bei zeitdifferentiellen- und zeitintegralen Messungen, bei zusätzlichem externen Magnetfeld und bei hohen und tiefen Temperaturen, was den Übergang zwischen statischer und zeitabhängiger Wechselwirkung bewirken kann.

6.1.1 Die elektrischen Feldgradienten

Der Friedel-Ansatz für die Ladungsabschirmung von Fremdatomen ergibt die Form (2.8) für die entstehenden EFG als Funktion des Abstands r_i vom Störzentrum,

$$q = \alpha \cdot \frac{\gamma_q}{3} \; \frac{A \cos(2k_F r_i + \varphi)}{r_i^3}$$

Die exakte Form dieses Ausdrucks ist bisher nicht experimentell nachgewiesen worden, dazu müßte jeweils isoliert an den verschiedenen Punkten r_i der EFG gemessen werden. Die üblichen Meßmethoden der EFG in verdünnten Legierungen (NMR, Mößbaereffekt, PAC) erfassen eine Mittelung des EFG über viele verschiedene Gitterplätze r_i. Die Form (2.8) des EFG hat sich immerhin der einfacheren Form $q \sim 1/r^3$ überlegen erwiesen[49]. Außerdem konnte in verschiedenen Arbeiten gezeigt werden, daß Beiträge zum EFG, die von einer Verzerrung der Gitterstruktur durch die Störstelle herrühren, für punktförmige Störzentren wesentlich kleiner als die Beiträge der Leitungselektronen in der Form (2.8) sind[49].

Für Störzentren, die von Strahlenschädigungen herrühren, dürfte der Ansatz (2.8) ebenfalls eine vernünftige Näherung darstellen, eine Leerstelle läßt sich

dann behandeln wie ein Fremdatom mit der Ladungsdifferenz $\Delta Z = -Z_o$, wobei Z_o die Wertigkeit der Matrix ist. Die Gitterverzerrungen um solche Fehlstellen (z.B. Anziehung der nächsten Nachbarn bei einer Leerstelle) könnten jedoch stärker sein als im Falle der substitutionellen Einführung von Fremdatomen. Ist der Probenkern direkt einer Störstelle benachbart, so ist die Gültigkeit der Formel (2.8) umstritten, die vermutlich besser für größere Abstände vom Störzentrum geeignet ist.

Es scheint jedoch gerechtfertigt zu sein, als beste allgemeine Näherung für die EFG in der Umgebung von Symmetrie- und Ladungsstörungen einen Ausdruck der Art (2.8) zu verwenden. Eine Besonderheit ergibt sich für den EFG am Sondenort, wenn die Sonde selbst ein Fremdatom im Metallgitter ist. Dadurch wird der EFG verändert, da auch die Leitungselektronenstruktur um das Sondenatom verändert ist. Dieses Problem wird in der Literatur bisher theoretisch nicht behandelt, der Unterschied zu dem Fremdatomproblem in Abschnitt 5. liegt darin, daß der EFG an der Fremdatomsonde nicht von der nichtkubischen Gitterstruktur sondern von einer Leitungselektronendichteoszillation ausgeht. Eine kurze Diskussion dieses Problems findet sich bei Hinman[50]. Die auftretenden Veränderungen der EFG dürften in der Größenordnung der gemessenen Effekte an den Fremdatomen in den nichtkubischen Metallen liegen (Abschnitt 4. und 5.), also maximal sich um einen Faktor 2 bis 3 von den EFG an Sondenkernen von Matrixatomen unterscheiden.

NMR-Experimente[51] an fremdatomdotierten Kupfereinkristallen konnten erstmals die Stärke der EFG am nächsten und übernächsten Nachbarort relativ zum Fremdatom messen. Damit ist ein Vergleich mit dem EFG möglich, der aus einer NMR-Messung in polykristallinem Kupfer mit statistisch verteilten Fremdatomen mithilfe der Formel (2.8) gewonnen wurde.

Tabelle 7 zeigt diesen Vergleich für einige Fremdatome; der direkt gemessene EFG ist in den meisten Fällen größer als der nach (2.8) bestimmte, ganz besonders für Zn in Cu besteht eine erhebliche Diskrepanz. Zumindest für die ersten beiden Nachbarn des Fremdatoms gibt eine Analyse mithilfe der Friedelformel (2.8) keine gut mit dem Experiment übereinstimmenden Ergebnisse.

Formel (2.8) muß damit wohl als nur qualitativ richtig angesehen werden; für alle Probleme, die mit statistisch verteilten Fremdatomen befaßt sind, bleiben Unsicherheiten in der Form und Stärke der EFG.

Für den EFG, der durch eine direkt benachbarte Gitterfehlstelle (z.B. Leerstelle) hervorgerufen wird, gibt es bisher nur wenig experimentelle Daten. Ein interessanter Wert existiert für die Matrix Silizium. Elkin[52] mißt die Hyper-

feinwechselwirkung an einem As-Fremdatom, das an eine Leerstelle gebunden ist, mit EPR- und ENDOR-Methoden. Der EFG am Ort des ^{75}As ist mit in Tabelle 7 aufgeführt. Das besondere Interesse an diesem Wert besteht darin, daß das System As-Si ähnlich dem System As-Ge ist, das in Abschnitt 6.2 diskutiert wird.

In Tabelle 7 ist außerdem der EFG am Ort der Sonde ^{111}Cd in einer Ag-Matrix aufgeführt, der von einem direkt benachbarten Au-Atom herrührt. Der Wert entstammt einer Friedelanalyse, er ist nachdem vorher gesagten wohl nur annähernd gültig. Experimente mit diesem Legierungssystem kommen in den Abschnitten 6.2.1, 6.2.2 und 6.2.4 vor.

Tabelle 7: Elektrische Feldgradienten in der Nähe von Fremdatomen und Leerstellen in kubischen Metallen (in 10^{17} V/cm^2).

Sonde	Matrix	Fremdatom	$eq^{exp}_{(nn)}$	$eq^{theo}_{(nn)}$	$eq^{exp}_{(nnn)}$	$eq^{theo}_{(nnn)}$
^{63}Cu	Cu	Zn (Ref.53)	1.1	0.18	0.04	-0.01
		Ge (Ref.53)	1.1	1.1	<0.43	-0.27
		Cd (Ref.53)	0.85	0.20	0.22	-0.026
		In (Ref.53)	1.25	0.60	<0.43	-0.07
		Sb (Ref.53)	1.50	1.50	0.96	-0.45
^{111}Cd	Ag	Au[50]	--	0.30		
^{75}As	Si	Leerstelle[52]	11.7	--		

Der Feldgradient ist gemessen (exp) bzw. berechnet (theo) an der Stelle des nächsten Nachbarn (nn) oder übernächsten Nachbarn (nnn) zum Fremdatom (Leerstelle). Die theoretischen Werte stammen aus einer Analyse vom Friedel-Typ (siehe die zugehörigen Referenzen).

6.1.2 Die Strahlenschädigung in Metallen nach Kernreaktionen

Die Anregung der Festkörpersonden durch Kernreaktionen führt zur Bildung atomarer Fehlstellen in den bestrahlten Matrizen. Die prinzipiellen Stufen dieses Prozesses und ihre Verbindungen zur PAD-Meßmethode sollen hier skizziert werden.

a) Fehlstellenerzeugendes Teilchen:

Die Diskussion bei Sielemann[54] zeigt, daß die vom Sondenkern wahrgenommene Fehlstellenkonfiguration von der Abbremsung des Sondenkerns selbst her-

rührt. Diese Interpretation hat sich bisher bei allen "in-beam"-Experimenten bestätigt, die bei Temperaturen oberhalb 80 K ausgeführt wurden. Die Fehlstellenerzeugung der Geschoßteilchen wird offensichtlich nicht von der Sonde wahrgenommen, die Aussage basiert experimentell im wesentlichen darauf, daß keine von der "makroskopischen" Zeit t abhängigen Störeffekte auftreten (etwa über Stunden im Verlauf eines Experiments).

b) Abbremsprozeß:

Die Abbremsung der Sonde in Metallen sollte unabhängig von der Temperatur der Matrix keine Störungen der Anisotropie hervorrufen. Es gilt hier die Theorie von Abragam und Pound[55] für extrem schnell fluktuierende Wechselwirkung über eine Gesamtzeit $T^{Brems} \approx 10^{-12}$ sec und Korrelationszeiten, die noch erheblich kürzer sind. Die Leitungselektronen der Metalle lassen alle Störungen der Elektronenhüllen während der Abbremszeit ausheilen.

c) Endposition des Sondenkerns:

Unter Endposition wird der Platz verstanden, der nach dem Abgeben der Rückstoßenergie eingenommen wird. Unterscheiden sich die Sondenkerne (Atome) in ihrer Masse, Wertigkeit und in ihrem Atomradius nur geringfügig von den Atomen der Matrix, so sind nach den Regeln von Hume-Rothery[56] die Voraussetzungen günstig, daß sich substitutionelle, feste Lösungen bilden; die Sondenatome also auf normale Gitterplätze kommen. Diese Regeln geben allerdings einen Prozeß im thermischen Gleichgewicht an, sie sagen nichts darüber aus, wie schnell sich dieses Gleichgewicht einstellt. Die Abbremsung eines Sondenkerns stellt einen extremen Ungleichgewichtszustand dar, und die Aussage, wo unmittelbar nach Abbremsung sein Gitterplatz ist, beinhaltet daher eine über die Hume-Rothery-Regeln hinausgehende Feststellung.

Aus einer Reihe von Experimenten mit kubischen Metallen läßt sich schliessen, daß der Rückstoßplatz ein normaler Gitterplatz ist. In manchen Experimenten ist die Aussage allerdings schwächer, und nur auf kubische Symmetrie des Rückstoßplatzes kann geschlossen werden, die in kubisch-flächenzentrierten Metallen auch auf Zwischengitterplätzen gegeben ist. Die Experimente in den nichtkubischen Metallen Cd[4] und Zn[35] und diese Arbeit, Abschnitt 4., zeigen sowohl aus der Stärke wie auch der Symmetrie der Quadrupolwechselwirkung, daß zumindest bei höheren Targettemperaturen (nähe Schmelzpunkt) die Endposition der abgebremsten Rückstoßkerne ein regulärer Gitterplatz ist; die Anzahl der auf reguläre Gitterplätze kommenden Sondenkerne kann eine Funktion der Targettemperatur sein.

Um festzustellen, ob sämtliche Rückstoßatome einen substitutionellen Gitterplatz finden, muß für das entsprechende Experiment die maximal erreichbare Anisotropie A_k bekannt sein. Dies ist der Fall für den $9/2^+$-Zustand von ^{67}Ge, dessen Anisotropie im festen Zn und in einem flüssigen Metall gemessen wurde (siehe Abschnitt 4.4). Das Ergebnis, A_2 (fest) $\approx$ A_2 (flüssig) zeigt, daß sämtliche Kerne bei 630 K auf reguläre Gitterplätze kommen.

d) Verteilung der Rückstoßenergien:
Wenn der gesamte Einfluß der Strahlenschädigung auf die γ-Winkelverteilung von den Rückstoßsondenatomen selbst herrührt, so macht sich der Einfluß der Kernreaktion auf die Strahlenschädigung durch die Form der Verteilungsfunktion der Rückstoßenergien, $P(E_r)$ bemerkbar. $P(E_r)$ ist der relative Anteil von Rückstoßatomen der Energie E_r, diese Energie E_r liegt bei den bisher mit PAD-Methoden untersuchten Fällen etwa zwischen 10 keV und 1 MeV, abhängig von den Reaktionspartnern, Einschußenergien und dem Rückstoßwinkel. Die Abhängigkeit vom Rückstoßwinkel bringt innerhalb eines Experiments praktisch die ganze Spannweite von E_r mit sich. Die funktionale Abhängigkeit der Strahlenschädigung von E_r ist bisher kaum untersucht, zur Vereinfachung wird statt mit $P(E_r)$ mit einem Ensemblemittelwert gerechnet. Die Berechtigung für diese Mittelwertbildung ist zumindest zweifelhaft.

e) Umgebung der Sonde nach Beendigung des Abbremsprozesses:
Nach etwa 10^{-13}-10^{-12}sec ist der Abbremsprozeß beendet. Jedes Rückstoßatom von mehr als einigen keV Energie hat durch die Abbremsung eine Verlagerungskaskade gebildet. Bevor die thermischen Eigenschaften der Matrix die Veränderung der gebildeten Defektstruktur bestimmen, gibt es kurzfristige, athermische Veränderungen, die aus der Instabilität der gebildeten Defektzone resultieren und in ca. 10^{-11}sec ablaufen. Die verbleibende, maximal mögliche Defektkonzentration C^{max} ist umgekehrt proportional dem Rekombinationsvolumen v_o für einen Defekt, $C^{max} = 1/2v_o$ [57]. Für Metalle wie Gold, Kupfer, Eisen beträgt v_o etwa 50-100 Atomvolumina, damit ergibt sich eine maximale, stabile Fehlstellendichte von 0.5 - 1%. Rückstoßatome mit einigen 10 keV Energie erzeugen in diesen Metallen solche fehlstellengesättigten Verlagerungskaskaden[58].
Die gebildete Defektstruktur erhält man statisch, wenn die Erzeugung bei genügend tiefen Temperaturen erfolgt, so daß keine thermische Veränderung stattfinden kann. Ein Kriterium für diese Temperatur ist[59]

$$T \ll \frac{E_I^M}{k \log \nu \tau} \qquad (6.1)$$

Hierbei ist τ die Lebensdauer des Sondenkerns, E_I^M die Aktivierungsenergie für die Wanderung eines Zwischengitteratoms und ν die matrixspezifische Vibrationsfrequenz (ca. $10^{13} sec^{-1}$).

Der Einfluß der Rückstoßenergie, die in 10^{-13} bis 10^{-12} sec an ein Gittervolumen von einigen tausend Atomen abgegeben wird, in der älteren Literatur als "thermal spike" behandelt, kann für die Dynamik der Fehlstellenzone praktisch vernachlässigt werden, wie Thompson[59] an einem Beispiel diskutiert. Mit Rückstoßenergien der behandelten Größenordnung ist die Lebensdauer eines "thermal spike" so gering, daß dort nur einige zusätzliche Zwischengitteratomsprünge auftreten, die Leerstellendiffusion aber nicht beeinflußt wird.

Nach der spontanen Rekombination wird bei endlichen Temperaturen ($\gg$ O K) der Matrix die thermisch aktivierte Veränderung der Verlagerungskaskade beginnen. In einem Computersimulationsexperiment untersucht Doran[60] das Kurzzeit-Ausheilverhalten von 5 keV- und 20 keV-Verlagerungskaskaden in Eisen. Es zeigt sich, daß die endliche Temperatur der Matrix (etwa 300 K) in Zeiten der Größenordnung µsec die für die Temperatur O K charakteristische Defektstruktur erheblich verändert. Es treten bis zu 70% Ausheilung der Leerstellen und Zwischengitteratome auf und gleichzeitig erfolgt Clusterbildung von Fehlstellen der gleichen Sorte von einigen Prozent der Gesamtfehlstellenmenge. Die sensitive Zeit der verwendeten Kernsonden fällt also gerade in diese Kurzzeitausheilperiode, deren genauer Verlauf von der Temperatur und den Anregungsenergien für die Fehlstellendiffusion abhängig ist. Als charakteristischen Zeitmaßstab benutzt Doran die mittlere Zeit zwischen zwei Sprüngen von Zwischengitteratomen bzw. Einzelleerstellen, dadurch lassen sich allgemeine Züge des Prozesses auch auf andere Metalle übertragen.

Die Abbildung 12 zeigt schematisch charakteristische Zeiten atomarer Bewegungsvorgänge nach der Kernreaktion, die zur Bildung der Sonde führte. Abbildung 13 zeigt beispielhaft das Ausheilverhalten von Zwischengitteratomen in einer Verlagerungskaskade.

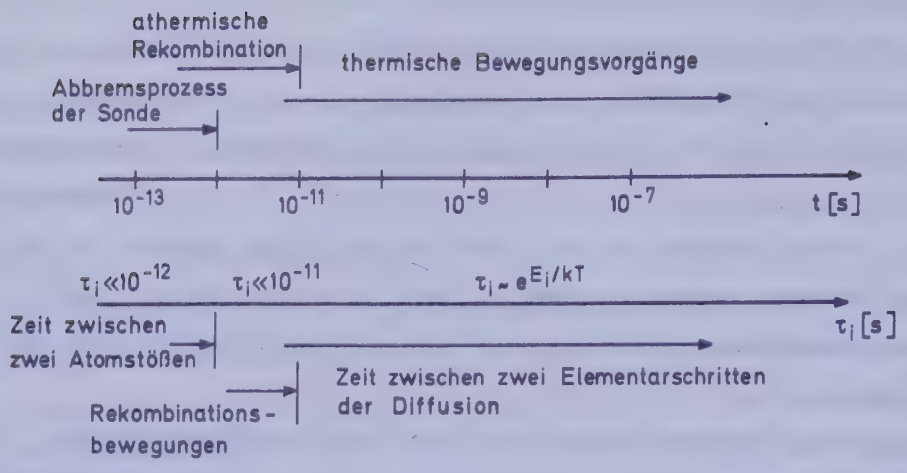


Abb. 12: Schematische Darstellung charakteristischer Zeiten atomarer Bewegungsvorgänge der angeregten Sonde und ihrer Festkörperumgebung nach der Kernreaktion; die t-Skala zeigt die Dauer der Vorgänge, die τ_i-Skala die Zeit zwischen zwei elementaren Bewegungsschritten.

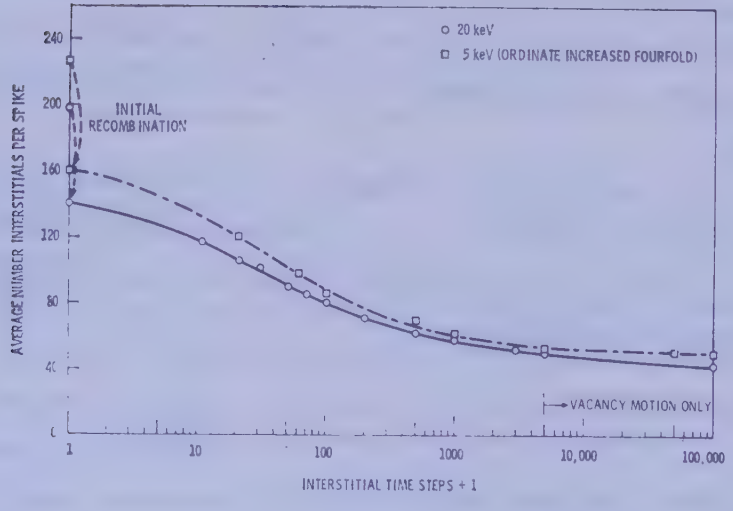


Abb. 13: Abnahme der Zwischengitteratome in einer Verlagerungskaskade nach 5 keV bzw. 20 keV Rückstoßabbremsung eines Eisenatoms in Eisen als Funktion der Anzahl der Zwischengitteratomsprünge. Für Ag bei 300 K entspricht ein Zwischengitteratomsprung einer Zeit von ca. 10^{-11} sec. Bild von Ref. 60

6.2 Messungen und Analysen von PAC-, PAD- und SOPAD-Experimenten in ladungs- und symmetriegestörten Metallen

In diesem Abschnitt werden Experimente beschrieben, die mit den Methoden PAC, PAD und SOPAD ladungs- und symmetriegestörte Metalle untersuchen. Die Gliederung des Abschnitts ist nach der Art der vorkommenden Wechselwirkungen vorgenommen:

6.2.1 Statische Störwechselwirkung, H_Q^{Pert}, in kubischen Gittern

6.2.2 Statische Störwechselwirkung bei zusätzlichem externen Magnetfeld, $H_Q^{Pert} + H_M$

6.2.3 Zeitabhängige Störwechselwirkung, $H_Q^{Pert}(t)$

6.2.4 Zeitabhängige Störwechselwirkung bei zusätzlichem externen Magnetfeld, $H_Q^{Pert}(t) + H_M$

Zu den einzelnen Punkten sind zuerst jeweils die Experimente aufgeführt, daran fügt sich eine theoretische Betrachtung und eine Diskussion der Prozesse.

Die PAC-Experimente wurden ausgehend von den beschriebenen Problemstellungen am Hahn-Meitner-Institut z.T. in Zusammenarbeit mit verschiedenen Arbeitsgruppen an der Universität Krakau ausgeführt.

6.2.1 Statische Störwechselwirkung, H_Q^{Pert}, in kubischen Gittern

a) PAC-Experimente[61]:

Als radioaktive Sonde diente das bekannte $5/2^+$-Niveau des ^{111}Cd, bevölkert vom Grundzustand des ^{111}In. Gemessen wurde die zeitdifferentielle γ-γ-Winkelkorrelation (TDPAC) in einer Silbermatrix, zu der Gold (0.16 At.%) legiert war. Eine wesentliche Eigenschaft der Ag-Au-Legierung ist, daß sie in allen Mischungsverhältnissen eine statistische Verteilung der Gold- und Silberatome auf substitutionellen Plätzen bildet. Abb. 14 zeigt das Produkt $A_2G_2(t)$. H_Q^{Pert} ist eine statische Wechselwirkung, weil die mittlere Zeit zwischen zwei Diffusionssprüngen sowohl der Ag- wie der Au-Atome sehr groß ist gegen die Lebensdauer des ^{111}Cd-Zustands von τ = 123 nsec. Das gilt für beliebige Temperaturen der Matrix und läßt sich aus den Aktivierungsenergien für Selbst- und Fremddiffusion errechnen.

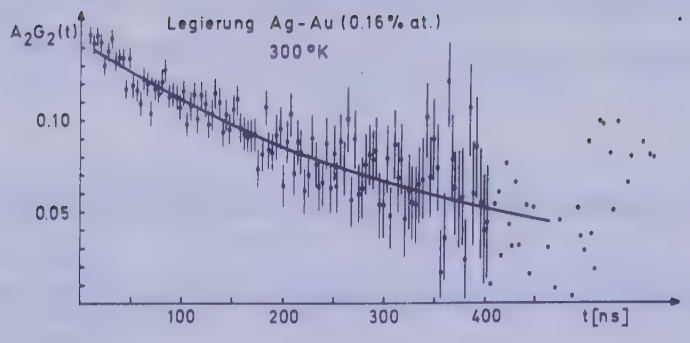


Abb. 14: γ-γ-Winkelkorrelation von ^{111}Cd in einer Ag-Au-Legierung. Die ausgezogene Kurve ist eine Exponentialfunktion (von den Autoren angepaßt), das Bild ist aus Ref. 61

b) PAD-Experimente:

Experimente "in-beam" liegen für diesen Fall der Wechselwirkung nicht vor, ein "off-beam"-Experiment[62] mißt die Reststrahlenschädigung einer Silbermatrix, in der durch die Reaktion (α,2n) ein ^{111}In-Präparat erzeugt wurde, durch nachfolgende γ-γ-Winkelkorrelation. Die Bestrahlung wurde bei Zimmertemperatur durchgeführt, die nachfolgenden Messungen Stunden oder Tage nach dieser Bestrahlung. Die Abb. 15 zeigt eine solche PAC-Messung, die seit der Erzeugung des Präparats noch vorhandene Gitterschädigung bewirkt eine Abschwächung der Anisotropie.

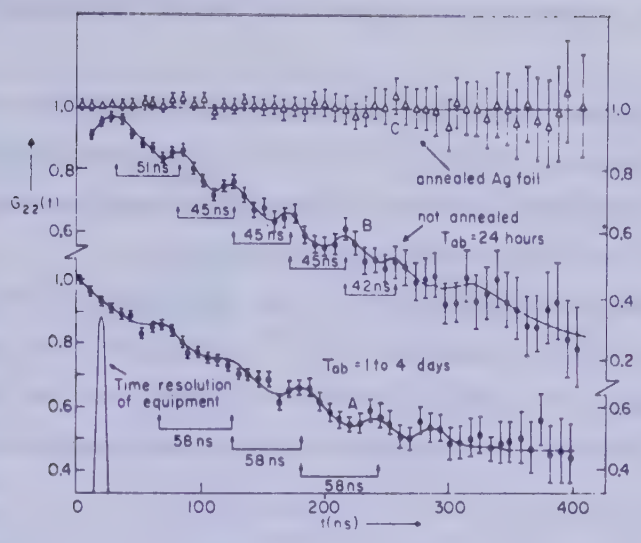


Abb. 15: Winkelkorrelation von ^{111}Cd in einer Silbermatrix bei Raumtemperatur, der Mutterkern ^{111}In wurde durch eine (α,2n)-Reaktion in Silber angeregt. Die Meßkurven wurden in einer ausgeheilten Probe (C) und in unausgeheilten Proben 24 bzw. 72 Stunden (B und A) nach Abschluß des α-Beschusses aufgenommen. Der Gauss-Frequenzverteilung (siehe Text) ist eine diskrete Quadrupolfrequenz für die Anpassung überlagert, Bild nach Ref. 62

c) Theorie:

Das Problem bei der Bestimmung von $G_k(t)$ ist die Berechnung des EFG an einem beliebigen Ort (Sondenort) der Matrix, wobei die statistisch verteilten Störladungen (Störstellen) an jedem Ort einen anderen EFG hervorrufen können. Dabei sind zwei Probleme zu lösen:

i) die analytische Form des von jedem Goldatom resultierenden EFG,

ii) die Bestimmung der Verteilungsfunktion der EFG, P(eq).

Daraus läßt sich dann $G_k(t)$ im Prinzip berechnen.

Lösungsansätze:

1) Wir berechnen zeitdifferentielle Störfaktoren $G_2(t)$ für statistisch verteilte Störungen in kubisch flächenzentrierten Gittern für die Kernspins 5/2 und 9/2. Dabei werden die folgenden Annahmen und Rechnungen gemacht:

   Störung:

   Von jedem Störatom geht eine oszillierende Ladungsdichteverteilung vom Friedel-Typ und die damit verbundene EFG-Verteilung aus. Die Fremdatome

sind statistisch verteilt. Es werden nur stark verdünnte Legierungen betrachtet.

Die letztere Annahme läßt die Vereinfachung zu, daß nur das dem Sondenatom nächste Fremdatom zum EFG beiträgt (das übernächste Fremdatom ist schon wesentlich weiter entfernt). Damit wird gleichzeitig im Rahmen des Friedel-Modells der EFG achsialsymmetrisch (2.8).

Die resultierende Störfunktion $G_2(t)$ ist dann eine Mittelung über alle vorkommenden Quadrupolfrequenzen $n\omega_o^{1,i}$, die nach (2.8) vom Abstand Sonde-Fremdatom abhängen und jeweils gewichtet werden mit der Wahrscheinlichkeit P_i, daß dieser Abstand bei gegebener Fremdatomkonzentration vorkommt.

$$G_2(t) = \sum_{n=0}^{N} \sum_{i} P_i \left(S_{2n} \cos n\omega_o^{1,i} t \right) + \text{const.} \qquad (6.2)$$

Die Konstante wird so gewählt, daß $G_2(t = 0) = 1$ gilt.

Tabelle 8 zeigt die verwendeten Modellparameter zur Berechnung der Störfunktion $G_2(t)$ mit Störkonzentrationen c = 0.25% und c = 1%.

2) Pustowka[64] berechnet in einem weitergehenden Ansatz EFG-Verteilungsfunktionen P(q) und das daraus resultierende $G_2(t)$ für den Spin 3/2 bei niedrigen und auch hohen Defektkonzentrationen (bis zu 50%) in verschiedenen Gittertypen. Die Unterschiede zu dem Ansatz unter 1) sind:

i) einfacherer EFG; es wird das Punktladungsmodell benutzt, daraus folgt: $q = \nabla^2(1/\vec{r})$

ii) wegen der hohen Defektkonzentrationen wird für einen beliebigen Gitterpunkt (Sondenort) die Überlagerung der EFG von mehreren Fremdatomen zugelassen, die statistische Verteilung der Fremdatome wird mit einer Monte-Carlo-Methode simuliert. Daraus resultieren nichtachsialsymmetrische EFG.

3) Behar und Steffen[62] benutzen die empirische Methode und passen als Störfunktion $G_2(t)$ eine Gauss-Frequenzverteilung der Quadrupolfrequenzen an, damit wird

$$G_2(t) = \frac{\int_0^\infty G_2(\omega_Q, t)\, P(\omega_Q)\, d\omega_Q}{\int_0^\infty P(\omega_Q)\, d\omega_Q} \qquad (6.3)$$

mit $$P(\omega_Q)\, d\omega_Q = \frac{1}{2\pi\sigma} e^{-(\omega_Q - \bar{\omega})^2/2\sigma^2}\, d\omega_Q$$

ϖ ist die frei anpaßbare Hauptfrequenz der Gaussverteilung und σ deren Breite.

Tabelle 8: Parameter für die Modellrechnungen zur Wahrscheinlichkeitsverteilung der elektrischen Feldgradienten P(eq) und die zugehörigen Störfunktionen $G_2(t)$ nach (6.2) in symmetrie- und ladungsgestörten Gittern (siehe Abb. 16,17).

Schale i	eq_i $[10^{17}\,V/cm^2]$	P_i a) c=0.25%	P_i a) c=1.0%	$\frac{e^2Qq}{h}$ (Q=0.8b) [MHz]
1	2.6	0.0296	0.1131	50
2	1.1	0.0146	0.0516	21
3	0.6	0.0556	0.1783	12
4	0.08	0.0266	0.0783	1.5
5	0.3	0.0508	0.1243	6
6	0.05	0.0164	0.0352	1
7	0.15	0.0912	0.1614	3
8	0.10	0.0106	0.0152	2

a) Ref. 63

Der Feldgradient in der i-ten Schale um das Fremdatom ist berechnet nach (z. B.)

(für den EFG werden nur positive Werte verwendet) mit den Parametern

A = 0.027

ρ = 0.09

k_F = 0.72 (a.u.)

a = 6.83 a.u. (Gitterkonstante)

α = 180

Die Parameter in der geschweiften Klammer entsprechen einer Friedelanalyse von Au-Fremdatomen in einer Cu-Matrix[17]. α wurde beliebig gewählt, um die hohe Quadrupolkopplungsfrequenz zu erreichen.

Zu Tabelle 8:

Um die Störfunktionen $G_2(t)$ mit den Werten aus Tabelle 8 mit derjenigen von Pustowka[64] vergleichen zu können, brauchen wir die Stärke ihrer Störwechselwirkung:

Form des EFG: $e\nabla^2(1/\vec{r})$

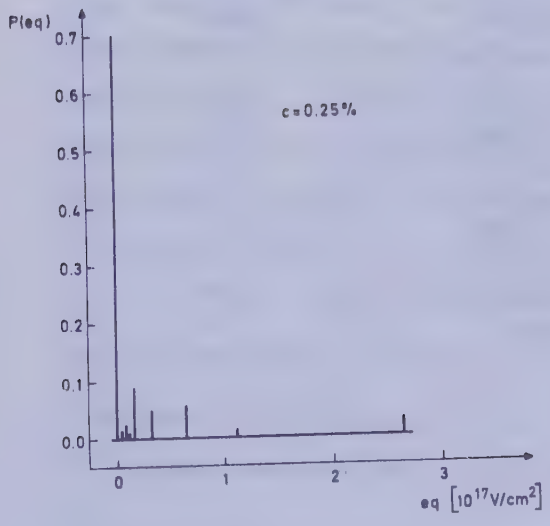
Für fcc Eisen ist der EFG am Nachbarort einer Störstelle (Abstand r_1=2.5 A):

$$eq_1 = 0.2 \times 10^{17}\,V/cm^2$$

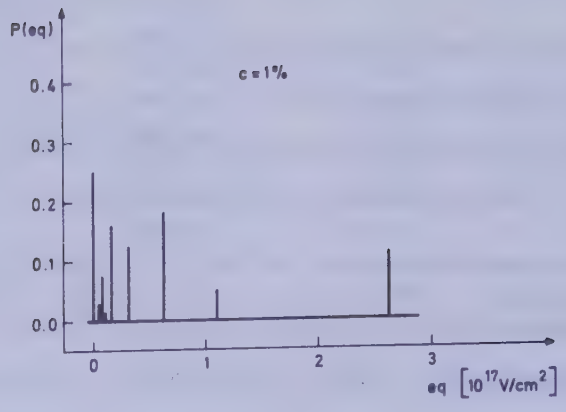
Damit ist die Quadrupolkopplungsfrequenz für den $3/2^-$-Zustand in ^{57}Fe (Q=0.2 b) neben einer Störstelle

$$\frac{e^2Qq}{h} \approx 1\ MHz\ .$$

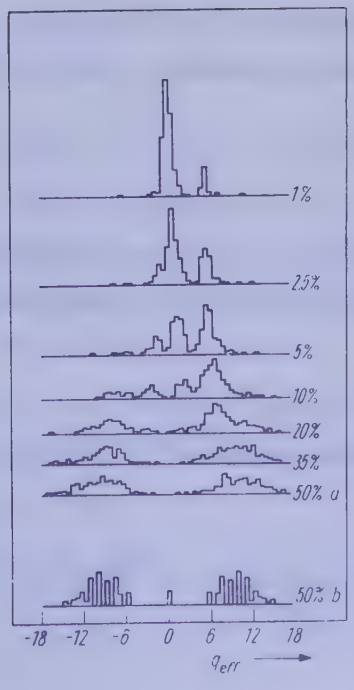
Diese Frequenz ist 50fach kleiner als im Beispiel nach Tabelle 8, der kleinere Spin bei Pustowka (3/2) bewirkt allerdings gegenüber 5/2 und 9/2 (Abb. 17) eine höhere Sensitivität auf die Quadrupolkopplung.



a)



b)



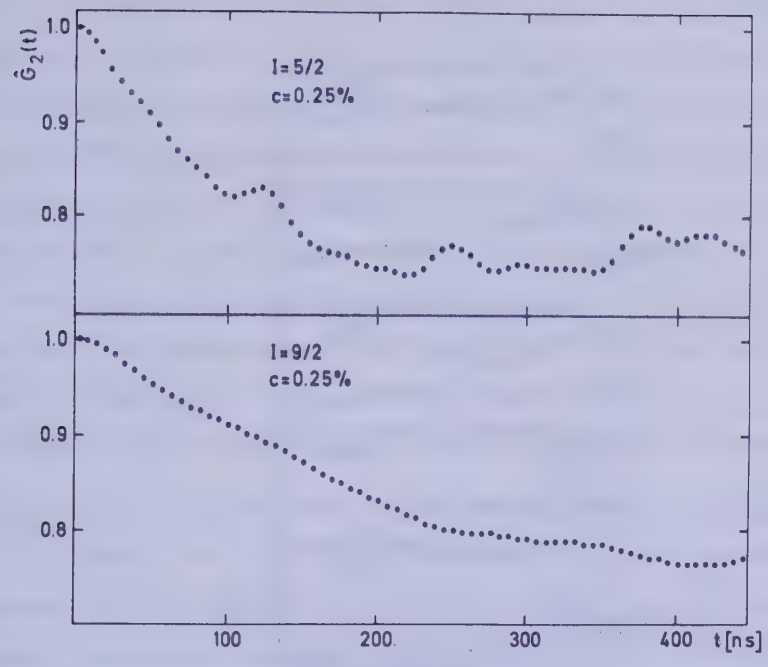
c)

Abb. 16:

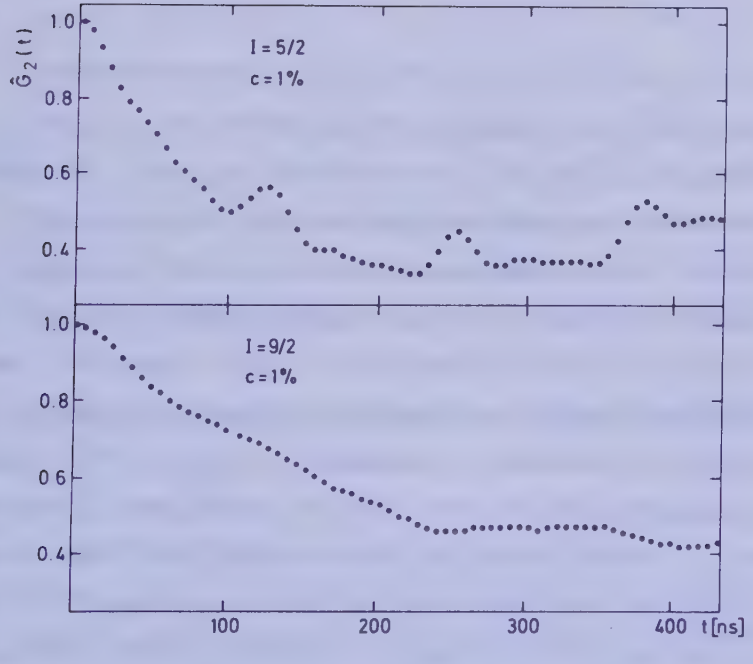
Wahrscheinlichkeitsverteilungen P(eq) der elektrischen Feldgradienten in fcc-Gittern bei verschiedenen Konzentrationen von Störatomen (bzw. Störstellen).

a) und b): nur das nächstgelegene Störatom trägt zum EFG bei (Tab. 8).

c): Überlagerung der elektrischen Feldgradienten verschiedener Störatome (Ref. 64), siehe Text.

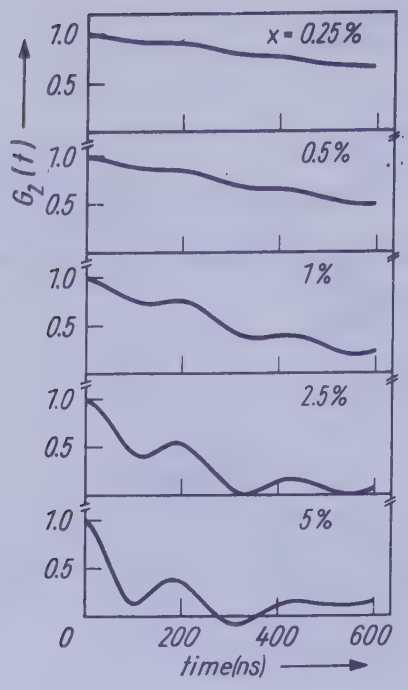


a)



b)

Abb. 17: Störfunktionen $G_2(t)$ zu den Verteilungen der Feldgradienten P(eq) aus Abb. 16 a, b, c.



c)

Diskussion

Die Verteilungsfunktionen der EFG, P(eq) sind in Abb. 16 zusammengestellt. Für realistische Parameter der Quadrupolwechselwirkung (siehe Tab. 8) zeigt sich sowohl bei dem Modellbeispiel $^{57}Fe(3/2^-)$ von Pustowka als auch bei den in der vorliegenden Arbeit gerechneten Modellbeispielen für die Spins 5/2 und 9/2, daß schon statistische Fehlstellenkonzentrationen unter 1% eine starke Alignmentabschwächung innerhalb weniger 100 nsec herbeiführen. Bei den Rechnungen für die Spins 5/2 und 9/2 ist der kleinere Spin, wie zu erwarten, bei gleicher Quadrupolkopplungsfrequenz sensitiver auf die Störwechselwirkung. Er zeigt wegen der geringeren Zahl beitragender Frequenzen (n in 6.2) noch ausgeprägte Quadrupolstrukturen, während sich für den Spin 9/2 eine fast glatte Abschwächungskurve ergibt. Abb. 17 zeigt die zu den Verteilungsfunktionen P(eq) gehörenden Störfunktionen $G_2(t)$. Der Abschneideradius von acht Schalen um das Störatom ist in den Modellrechnungen für die Spins 5/2 und 9/2 rein willkürlich, allerdings tragen noch weiter entfernte Störzentren wegen $1/r^3$ kaum noch zur Wechselwirkung bei. Die experimentelle Kurve des ^{111}Cd in der Ag-Au Legierung kann sicher mit der Störfunktion für den Spin 5/2 nach (6.2) beschrieben werden, allerdings ist die statistische Genauigkeit der Messung so schlecht, daß auch die einfache Exponentialfunktion eine Anpassung darstellt (siehe Abb. 14).

Der pauschale Ansatz einer Gaussverteilung (Theorie 3) verhüllt die physikalischen Aspekte (wie z.B. die Fehlstellenkonzentration), führt aber zu vernünftigen Anpassungen der Kurve (Abb. 15). Dort ist allerdings noch eine diskrete Quadrupolfrequenz überlagert, die von den Autoren als eine dem Sondenkern benachbarte Fehlstelle interpretiert wird. Der Ansatz einer statistischen Verteilung von Fehlstellen dagegen beinhaltet von sich aus auch das Auftreten einer ausgeprägten Quadrupolstruktur für den Spin 5/2 (Abb. 17a). Ein Blick auf die Verteilung P(eq) der Abb. 16a zeigt auch, daß sie sich angenähert beschreiben läßt als eine Gaussverteilung um einen kleinen Wert eq plus die verhältnismäßig isoliert vorkommende höchste Frequenz.

Wendet man zur Interpretation der Abnahme der Anisotropie $A_2G_2(t)$ (Abb. 15) die Formel (6.2) an (die zumindest den glatten Abfall qualitativ richtig beschreibt), so kann man aus dem Vergleich mit der Messung in der Ag-Au Legierung entnehmen, daß die Fehlstellendichte der Sondenumgebung in der Abb. 15 in der Größenordnung einige $^{o}/_{oo}$ liegt, was mit den Aussagen über den strahlungsgeschädigten Festkörper (6.1.2) übereinstimmt. Durch die Mobilität der Zwischengitteratome bei Zimmertemperatur sind nach Stunden viele Defekte bereits ausgeheilt, die verbleibende Reststrahlenschädigung sollte in der Größenordnung wenige $^{o}/_{oo}$ liegen. Damit zeigt das Experiment von Behar und Steffen ebenfalls die hohe Sensitivität des ^{111}Cd-Zustands($I^{\pi} = 5/2^{-}$, $Q \approx 0.7b$) für so geringe Störungen des Gitters.

Ein kürzliches "in-beam" Experiment von ^{111}Cd in Pd[65] bei verschiedenen Temperaturen zeigt eine Struktur, die ebenfalls mit dem Ansatz (6.2) beschrieben werden kann. Wiederum zeigt der Vergleich mit der Ag-Au-Legierung, daß die Störstellendichte im Pd bei Temperaturen unter 300 K mit der Au-Konzentration der Legierung vergleichbar ist, also einige $^{o}/_{oo}$ beträgt.

6.2.2 Statische Störwechselwirkung bei zusätzlichem externen Magnetfeld, $H_Q^{Pert} + H_M$

a) PAC Experimente:

Von Bozek et al.[66] wurden die Experimente mit Silber-Gold-Legierungen am ^{111}Cd mit einem zusätzlichen externen Magnetfeld durchgeführt. Die entstehende Funktion $G_2(t)$ läßt sich empirisch beschreiben als Abschwächung der maximal beobachtbaren Anisotropie, außerdem tritt eine Verringerung der Anisotropie als Funktion der Zeit t auf, die Abb. 18 zeigt die Modulationsspektren bei verschiedenen Goldkonzentrationen. Das externe Magnetfeld betrug ca. 18 kG.

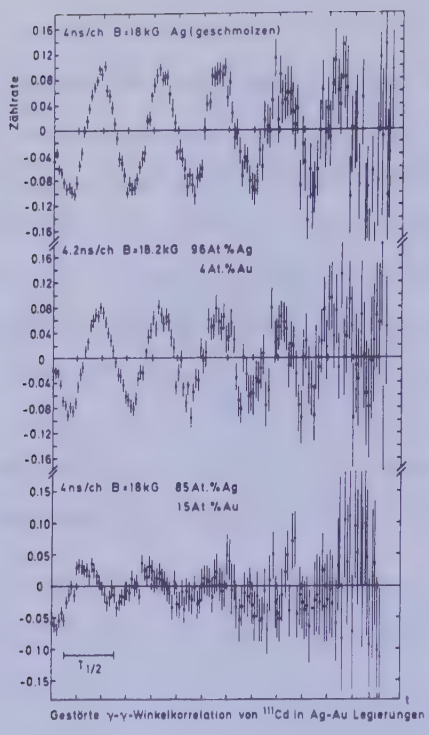


Abb. 18: γ-γ-Modulationsspektrum von ^{111}Cd in Ag-Au-Legierungen mit externem Magnetfeld. Die Messungen in den zwei Legierungen sind bei Raumtemperatur durchgeführt. Bild von Ref. 66

b) PAD Experimente:

Als Sonde diente hier das 6^--Niveau in ^{66}Cu($T_{1/2}$ = 600 nsec), das über die Reaktion ^{65}Cu(d,p)^{66}Cu angeregt wurde. Ribbe[67] fand, daß in einer Kupfermatrix bei einem externen Magnetfeld von ca. 20 kG keine Relaxationserscheinungen festzustellen sind. Die Messungen bei Ribbe wurden als Funktion der Temperatur von 100 K bis 1100 K durchgeführt, dabei blieb auch A_2 konstant innerhalb der experimentellen Fehlergrenzen.

In dieser Matrix kann man deshalb mit einem PAD-Experiment den Einfluß von Fremdatomen auf $G_2(t)$ näherungsweise exklusiv studieren und damit analoge Verhältnisse wie bei einem PAC-Experiment erzeugen.

Untersucht wurden Legierungen mit 1.3 At.% Zn und 10 At.% Zn, dabei wurde das Spinrotationsspektrum des 6^--Zustands bei einem Magnetfeld von ca. 22 kG gemessen. Abb. 19 zeigt die Modulationsspektren.

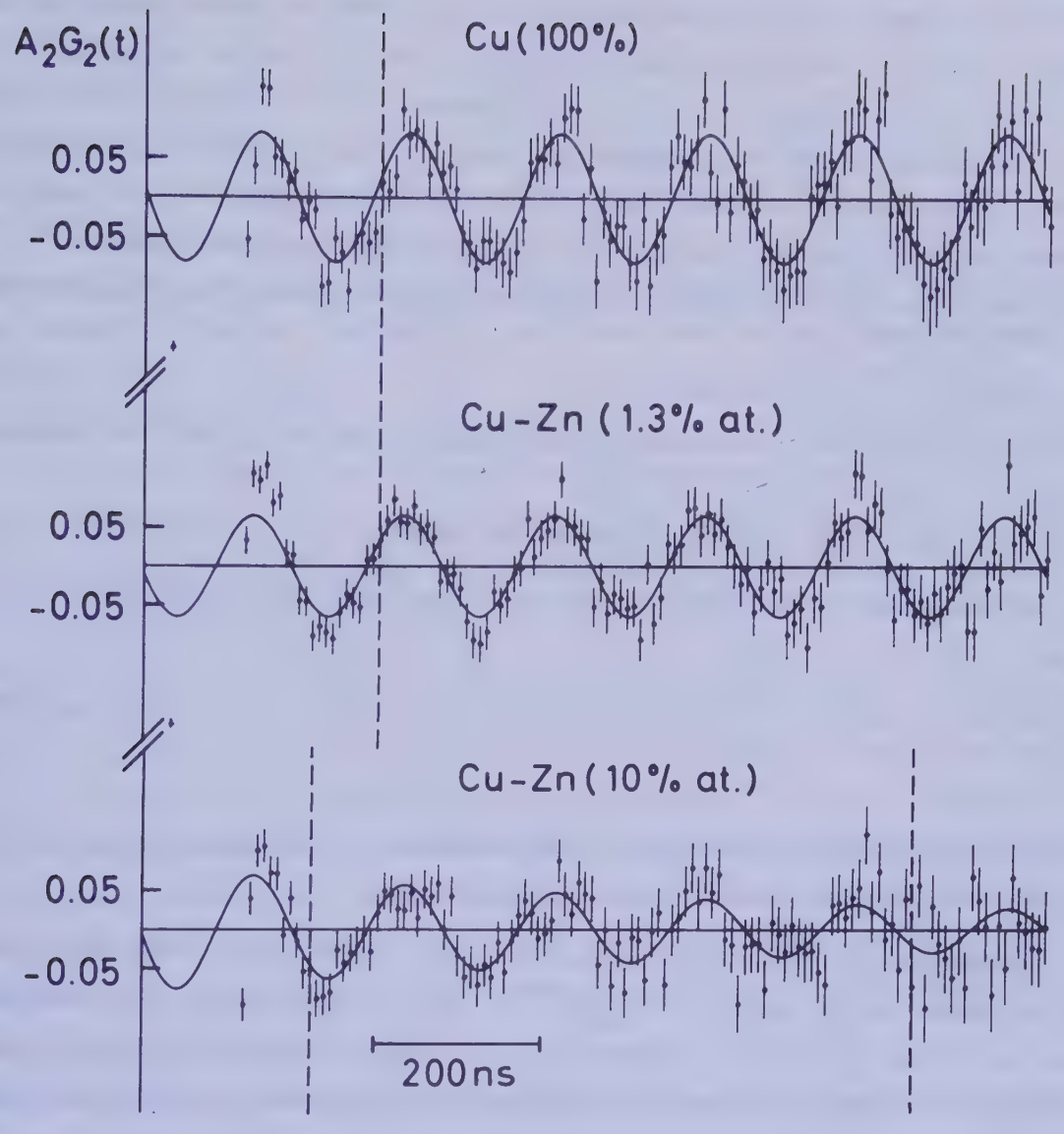


Abb. 19: Modulationsspektrum der γ-Winkelverteilung des 6^--Zustands in ^{66}Cu nach der Reaktion $^{65}Cu(d,p)^{66}Cu$ in Cu-Zn-Legierungen mit externem Magnetfeld. Messungen bei Raumtemperatur.

c) Theorie:

Die Theorie kombinierter Wechselwirkung eines starken externen Magnetfeldes mit einer breiten Quadrupolfrequenzverteilung, wie sie durch statistisch verteilte Fehlstellen oder Fremdatome hervorgerufen wird, ist bisher nicht allgemein behandelt worden. Wir beschränken uns hier auf eine empirische Beschreibung der experimentellen Ergebnisse. Die Meßkurven der Abb. 18, 19 legen eine Beschreibung der Störfunktion $A_2G_2(t)$ mit folgenden Parametern nahe:

i) Anisotropie zum Zeitpunkt der frühestmöglichen Beobachtung (Auswertung) t^{obs}, $A_2(t^{obs}) = \hat{A}_2$

ii) Magnetische Larmorfrequenz ω_L

iii) Abschwächung der Anisotropie $\hat{A}_2$ als Funktion der Zeit, mit dem Ansatz $e^{-\underline{\lambda_2} t}$, wobei t bei t^{obs} beginnt.

$\underline{\lambda_2}$ ist dabei ein rein empirischer Parameter.

Damit läßt sich die Störfunktion der γ-Winkelverteilung schreiben als:

$$A_2 G_2(t) = \hat{A}_2 e^{-\underline{\lambda_2} t} \cos(2\omega_L t - \varphi) \qquad (6.4)$$

Für die Ag-Au-Legierungen wurde diese Anpassung nicht gemacht, da die Originaldaten der Autoren nicht zur Verfügung standen.

Die Anpassung für die Cu-Zn-Legierungen ist in der Abb. 19 zu sehen. Die reine Cu-Matrix zeigt, wie schon Ribbe[67] fand, eine Modulation ohne Abschwächung, mit Ribbe (6.2.2 b)) folgern wir, daß dies die ungestörte Anisotropie A_2 ist. Die 1.3% Legierung zeigt ebenfalls keine zeitabhängige Abschwächung der Anisotropie $e^{-\underline{\lambda_2} t}$, aber eine geringfügig kleinere Anisotropie $\hat{A}_2$.

Die 10%-Legierung läßt sich gut mit der Funktion (6.4) anpassen, wenn die Anpassung erst zu einer Zeit $t > t^{obs}$ ($\hat{\hat{A}}_2$) vorgenommen wird. Bis dahin erfolgt offensichtlich eine stärkere Anisotropieabnahme als $e^{-\underline{\lambda_2} t}$, wie auch bei der Ag-Au-Legierung (15%) zu sehen ist.

Man erhält generell eine Abschwächung auf ein $\hat{\hat{A}}_2$ und dann eine etwa exponentialfunktionsförmige Abschwächung.

Damit wird aus (6.4) genauer

$$A_2 G_2(t) = \hat{\hat{A}}_2 e^{-\underline{\lambda_2} t} \cos(2\omega_L t - \varphi) \qquad (6.4a)$$

Die Daten aus den Anpassungen nach Abb. 19 sind:

a) 0% Zn: $\hat{\hat{A}}_2 = A_2 = -8.2(6)\ \%$ $\Big\}$ $\underline{\lambda_2} = 0$

b) 1.3% Zn: $\hat{\hat{A}}_2 = \hat{A}_2 = -6.6(5)\ \%$ $\Big\}$

c) 10% Zn: $\hat{\hat{A}}_2 = -7.8(15)\ \%$; $1/\underline{\lambda_2} = (0.9 \pm 0.6)\ \mu s$

Diskussion

Beim Vergleich der Messungen von ^{111}Cd in Silber-Gold-Legierungen ohne externes Magnetfeld und mit Magnetfeld sieht man unmittelbar die unterschiedliche Wirkung der Quadrupolstörung H_Q^{Pert} auf $G_2(t)$: Während ohne Magnetfeld schon bei Goldkonzentrationen $\leq$ 1% die Anisotropie innerhalb weniger 100 nsec fast vollständig zerstört wird (durch die theoretischen Ansätze in (6.2.1) richtig beschrieben), ergibt sich mit Magnetfeld innerhalb der gleichen Zeit erst bei höheren Konzentrationen i) eine Abnahme der Anisotropie A_2 auf $\hat{\hat{A}}_2$ und ii) eine Abnahme der Anisotropie als Funktion der Zeit. Die höchstmögliche Quadrupolfrequenz, die sich ergibt, wenn die ^{111}Cd-Sonde und ein Goldatom direkt benachbart sind, sollte einige 10 MHz betragen (Tab. 7), eine hypothetische mittlere Störfrequenz ist daher sehr viel kleiner und damit auch kleiner als die magnetische Larmorfrequenz (ca. 5MHz für ^{66}Cu bzw. 10 MHz für ^{111}Cd bei einem Feld von ca. 20 kG). Das externe Magnetfeld wirkt wie ein "holding-field" für die Anisotropie. Ohne die exakte Funktion der kombinierten Wechselwirkung zu kennen, kann man sie empirisch als einhüllende Kurve durch die Larmorfrequenz mit abgeschwächter Anisotropie $\hat{\hat{A}}_2$ und einer Abschwächung als Funktion der Zeit darstellen ($e^{-\underline{\lambda_2} t}$).

Bei dem PAD-Experiment mit der Sonde $^{66}Cu(6^-)$ ergibt sich ein ähnliches Bild, die Konzentration von 1.3 At.% Zn kann gerade von der Sonde "wahrgenommen" werden, während die starke Zn-Konzentration zu einer Abschwächung von A_2 auf $\hat{\hat{A}}_2$ und zu Anisotropieabschwächung als Funktion der Zeit führt.

Das Quadrupolmoment des 6^--Zustands ist nicht bekannt, und es läßt sich auch kaum eine realistische Abschätzung davon machen. Der von einem Zn-Fremdatom in Kupfer hervorgerufene EFG ist experimentell bekannt (Tab. 7), es lassen sich also Schlüsse über die Empfindlichkeit der ^{66}Cu-Sonde bezüglich der EFG durch Symmetrie- und Ladungsstörung ziehen.

Nimmt man die EFG-Stärke durch die strahlenerzeugten Gitterfehlstellen von ähnlicher Größe wie die durch die Zn-Atome an, so sieht man, daß sich eine Fehlstellendichte von wenigen Promill bis Prozent Konzentration kaum auf das Spinrotationsspektrum auswirkt, und diese Konzentration ist ja realistisch

(6.1.2) für die Strahlenschädigung bei tieferen Temperaturen (≤ Zimmertemperatur). Da im Kupfer keine Korrelation von Sonde und Fehlstelle über ein Fremdatompotential auftreten kann, "sieht" die Kupfersonde die statistische Verteilung der Störstellen nach dem Abbremsprozeß und deren von der Sonde unbeeinflußte thermische Bewegungen. Die Aussage der Festkörperphysik über die Strahlenschädigung von einigen Promill Konzentration ist damit durchaus mit den Messungen von Ribbe verträglich; die Cu-Sonde ist, wie die Experimente mit den Zn-Legierungen zeigen, bei Anlegen eines Magnetfeldes nicht empfindlich genug, die Strahlenschädigung der Cu-Matrix zu zeigen.

6.2.3 Zeitabhängige Störwechselwirkung $H_Q^{Pert}(t)$ (ohne externes Magnetfeld)

In ungeschädigten Festkörpern (ohne Überschußleerstellen) kann mit PAC/PAD-Methoden kaum eine zeitabhängige Quadrupolwechselwirkung beobachtet werden, da die Platzwechselfrequenzen der Atome im Vergleich zu den Halbwertszeiten üblicher Sondenkerne ($\tau \approx$ ns - µs) zu gering sind. In strahlengeschädigten Festkörpern ist statt der Aktivierungsenergie für die Selbstdiffusion oft nur noch die Aktivierungsenergie für die Wanderung von Atomen aufzubringen[54], dadurch wird die Mobilität der Atome beträchtlich erhöht. Die Beschreibung der zeitabhängigen Wechselwirkung im Grenzfall schnell fluktuierender Störungen wird durch die Theorie von Abragam und Pound gegeben[55],

$$G_k(t) = e^{-\lambda_k t}$$

mit $\lambda_k \sim \tau_c \langle \omega_E^2 \rangle$ (6.5)

und $\langle \omega_E^2 \rangle = \frac{eQ}{4I(2I-1)\hbar} \langle (eq)^2 \rangle$, außerdem: $\tau_c \ll \tau$

$\sqrt{\langle \omega_E^2 \rangle}\, \tau_c \ll 1$

τ_c ist dabei die Korrelationszeit und $\langle \omega_E^2 \rangle$ die mittlere Frequenz der fluktuierenden Wechselwirkung.

Zeitabhängige Störungen, die nicht in diesen Grenzbereich fallen, lassen sich zur Zeit nicht allgemein im Rahmen der Methode der gestörten γ-Winkelverteilungen beschreiben. Es existieren jedoch schon einzelne Rechnungen für Spezialfälle[68].

PAD-Experimente in strahlengeschädigten Festkörpern, die mit der Abragam und Pound-Theorie beschreibbar wären, liegen bisher nicht vor, siehe jedoch Abschnitt 6.2.4 der zeitabhängigen Wechselwirkung mit zusätzlichem Magnetfeld.

6.2.4 Zeitabhängige Störwechselwirkung bei zusätzlichem externen Magnetfeld, $H_Q^{Pert}(t) + H_M$

SOPAD-Experimente

Mit der stroboskopischen Beobachtung der Kernlarmorpräzession wurden in früheren Arbeiten die Resonanz des $9/2^+$-Zustands von ^{73}As in einer Germaniummatrix[3,54] und des $11/2^-$-Zustands von ^{109}Cd in einer Silbermatrix[69,70] als Funktion der Temperatur gemessen. Die Schwächung der Resonanzamplitude und Verbreiterung der Resonanz mit fallender Temperatur wurden im Rahmen einer zeitabhängigen Störwechwechselwirkung (mit der Theorie von Abragam und Pound) erklärt, die der statischen Magnetfeldwechselwirkung überlagert ist. Die Temperaturabhängigkeit wurde als Veränderung der Korrelationszeit gedeutet, welche die Aktivierungsenergie für Fehlstellendynamik widerspiegelt. Hier soll nicht versucht werden, die ermittelten Aktivierungsenergien an passende Daten anderer festkörperphysikalischer Meßmethoden anzuschließen, sondern die Gültigkeit und Grenzen der bisherigen Interpretation kritisch zu untersuchen, besonders mit Hilfe zeitdifferentieller Messungen.

a) ^{109}Cd in Ag

Die zwei Experimente[69,70] des ^{109}Cd-Zustands in einer Silbermatrix stützen sich in ihrer Interpretation im wesentlichen auf die Auswertung der stroboskopischen Amplitude als Funktion der Temperatur, eine genaue Analyse der Linienbreiten und der von der Resonanz eingeschlossenen Fläche liegt nicht vor bzw. kann wegen fehlender Meßgenauigkeit nicht gegeben werden. Nur die Konstanz der Fläche liefert jedoch einen hinreichenden Anhaltspunkt für die Gültigkeit des Abragam und Poundschen Ansatzes zeitabhängiger Störwechselwirkung, $G_2^{Pert}(t) = e^{-\lambda_2 t}$, mit dem die Stroboskopieresonanz die folgende Form erhält:

aus der Resonanzüberhöhung b_2 in (3.2) wird:

$$b_2^{Pert} = \frac{3/4\, A_2}{1 + 1/4\, A_2 + \tau \lambda_2}$$

τ: Lebensdauer des Kerns (6.6)

$\lambda_2 \sim \tau_c \langle \omega_E^2 \rangle$

$$\Delta \omega_{1/2} = 1/\tau + \lambda_2 \quad \text{(Linienbreite)}$$

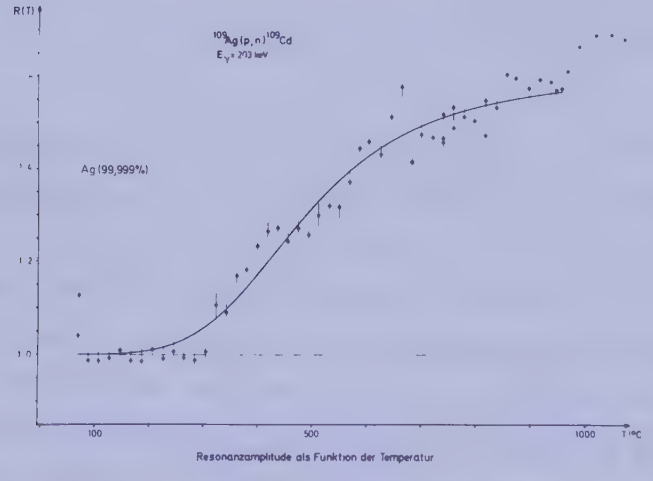
Die Linienform der Resonanz für andere Ansätze der Störfunktion $G_2^{Pert}(t)$ ist bisher nicht berechnet, außerdem die experimentelle Genauigkeit der gemessenen Kurven nicht genügend, um eventuelle Abweichungen von der Lorentzform (3.2;6.6) festzustellen. Ein gleichzeitiges Wirken von Amplitudenabnahme (A_2 auf $\hat{A}_2$) und Relaxation der Form $e^{-\lambda_2 t}$ (6.5) würde obendrein die gemes-

sene Relaxationskonstante λ_2 unter der Annahme reiner Relaxation (6.6) verfälschen. Die Breite der Stroboskopiekurve bei 830°C [69] läßt vermuten, daß bei dieser Temperatur die Konstanz der Fläche nicht mehr gegeben ist und damit die Auswertung mit der einfachen Störfunktion (6.6) nicht länger sinnvoll ist. Die Messungen bei Semmler geben darüber keinen eindeutigen Aufschluß.

b) ^{73}As in Ge

Grundsätzlich gilt die gleiche Kritik für diese Messung wie im Fall des ^{109}Cd. Ein Anhaltspunkt für die Abweichung von der Flächenkonstanz der Stroboskopiekurve ergibt sich bei einer Temperatur von ca. 780°C, wie neuere Messungen und Auswertungen zeigen.

Die Abb. 20 zeigt die stroboskopische Resonanzamplitude von ^{109}Cd in Ag als Funktion der Temperatur.



Resonanzamplitude als Funktion der Temperatur

Abb. 20: Stroboskopische Resonanzamplitude von ^{109}Cd in Ag als Funktion der Temperatur. Die Amplitude ist ein Vielfaches der Resonanzüberhöhung b_2 (6.6). Die ausgezogene Kurve stellt eine Anpassung unter Annahme von Gl. (6.6) dar. Bild von Ref. 70

Zeitdifferentielle Messungen von ^{109}Cd in Ag

Zur weiteren Aufklärung des Relaxationsmechanismus wurde die Messung des ^{109}Cd in Ag in Ergänzung zur stroboskopischen Messung mit der zeitdifferentiellen Methode durchgeführt. Die Abb. 21 zeigt die gemessenen Modulationsspektren bei verschiedenen Targettemperaturen. Man sieht unmittelbar, daß die Veränderung

der Spektren als Funktion der Temperatur mit Formel (6.4a) zu beschreiben ist: es erfolgt eine sehr schnelle Abschwächung der Anisotropie auf ein $\hat{\hat{A}}_2$ und dann eine etwa exponentialfunktionsförmige Abschwächung, durch ein $\underline{\lambda_2}$ beschreibbar. Beide Parameter sind von der Temperatur abhängig und entsprechen im Bild der Messung in den Cu-Zn-Legierungen verschiedenen Störstellenkonzentrationen. Die Interpretation der stroboskopischen Messungen, die von einer zeitabhängigen Wechselwirkung der Abragam und Pound-Form ausging, Gl. (6.6), ist also nicht haltbar.

Die Daten aus den Anpassungen nach Abb. 21 sind:

a) $T = 900°C$: $\hat{\hat{A}}_2 = -13.2(6)\%$; $1/\underline{\lambda_2} = 96(25)\,\mu s$

b) $T = 710°C$: $\hat{\hat{A}}_2 = -10.9(8)\%$; $1/\underline{\lambda_2} = 92(40)\,\mu s$

c) $T = 510°C$: $\hat{\hat{A}}_2 = -7.9(14)\%$; $1/\underline{\lambda_2} = 40(15)\,\mu s$

d) $T = 300°C$: $\hat{\hat{A}}_2 = -3.5(8)\%$; $1/\underline{\lambda_2} = 40(30)\,\mu s$

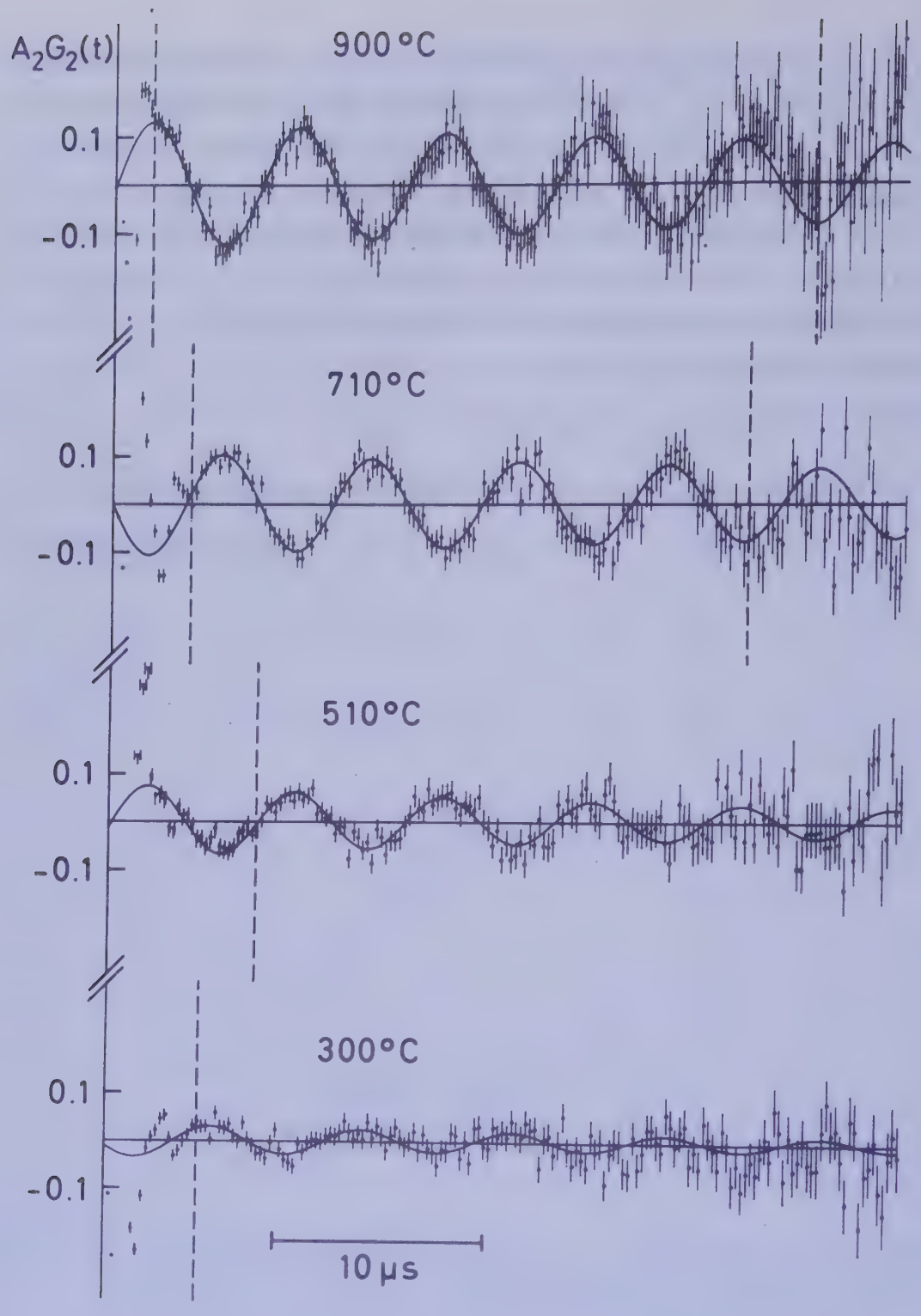


Abb. 21: Zeitdifferentielle Spinrotation des $11/2^-$-Zustands von ^{109}Cd in Ag nach der Reaktion $^{109}Ag(p,n)^{109}Cd$ bei verschiedenen Targettemperaturen. Das externe Magnetfeld beträgt ca. 5 kG.

Kürzliche Messungen von ^{71}As und ^{76}As in Ge als Funktion der Targettemperatur zeigten ein ähnliches Verhalten der Modulationsamplitude[86].

Diskussion

Der Rückstoßkern ^{109}Cd befindet sich nach dem Abbremsprozeß in einer Umgebung mit einer Strahlenschädigung von einigen Promill bis Prozent Konzentration, die durch seine eigene Rückstoßenergie erzeugt wurde. Die Störzone ist nicht statistisch von Leerstellen, Zwischengitteratomen und Clustern dieser Defekte durchsetzt, sondern es gibt eine leerstellenreiche innere Zone und darum eine Zone, die reicher an Zwischengitteratomen ist[59]. Das Rückstoßatom befindet sich vermutlich innerhalb der Leerstellenzone. Die geringe Bindungsenergie zwischen einem Cd-Fremdatom und einer Leerstelle von ca. 0.1 eV[71-73] gegenüber der Bindungsenergie von 0.4 eV[74] von zwei Leerstellen gibt der Clusterbildung unter den Leerstellen den Vorzug; sollte dennoch am Ort des Fremdatoms Cd spontan eine Leerstelle entstehen, so hat der Komplex Cd-Leerstelle wegen der geringen Bindungsenergie nur eine sehr kurze Lebensdauer, und es gibt keinen dauernden Ortsaustausch zwischen den Partnern (dauernd heißt im Vergleich zur Lebensdauer des Kernzustands).

Die auf den Cd-Kern wirkenden EFG sollten deshalb im wesentlichen von den Leerstellen und eventuellen Clustern daraus bestimmt werden. Dadurch sollte sich für den Cd-Kern eine EFG-Struktur ergeben, die einer etwa statistischen Verteilung von einigen Promill Fehlstellen entspricht.

Die Dynamik der Fehlstellenstruktur ist, wie im Modell von Doran[60] dargelegt, im wesentlichen durch die Sprungfrequenzen der Leerstellen und der Zwischengitteratome gegeben. Die hohen Sprungfrequenzen der Zwischengitteratome (E_I^M = 0.1 eV)[75] bewirken die kurzzeitigen Ausheilprozesse der Strahlenschädigung, ihre Dichte um den Rückstoßkern dürfte jedoch wegen der Abschirmung durch die Leerstellen so gering sein, daß sie nicht die bestimmende Größe für die zeitlich fluktuierenden Felder sind. Die Leerstellenaktivierungsenergie E_V^M beträgt 0.9 eV[75]. Die kurzzeitige Ausheilkinetik bewirkt eine Reduzierung beider Arten von Fehlstellen, die Anzahl der Sprünge pro Zeiteinheit für eine definierte Fehlstelle ergibt sich aus der Formel[59]

$$\nu = A \cdot \nu_0 \cdot \exp(-E^M/kT) \qquad (6.7)$$

Der Frequenzfaktor ν_o ist empirisch bekannt oder läßt sich auch ausdrücken als

$$\nu_o = k\,\Theta_D/h \qquad (6.8)$$

mit Hilfe der Debyetemperatur Θ_D für das entsprechende Metall. Für Silber gilt $\nu_o \approx 10^{13}\,sec^{-1}$ [75], ein Geometriefaktor, der den Unterschied zwischen Leerstellen und Zwischengitteratomen beschreibt, soll hier vernachlässigt werden. Für Zwischengitteratome (E_I^M) ist danach noch bei Zimmertemperatur die Frequenz $\nu > 10^9\,sec^{-1}$, für Leerstellen ist dagegen schon bei Temperaturen unterhalb 900 K $\nu < 10^8\,sec^{-1}$, wo etwa die Gültigkeit des Abragam und Pound-Bereichs (6.5) enden sollte. Für Fehlstellencluster liegen die Frequenzen oft zwischen beiden Extremen.

Clusterbildung aus Sondenatom (Cd) und Zwischengitteratomen sind wenig wahrscheinlich, der räumliche Abstand zwischen ihnen in der Verlagerungskaskade sollte im Mittel zu groß sein. Außerdem spricht das Temperaturverhalten der Stroboskopieresonanz gegen solche Komplexbildung, mit steigender Temperatur würde die Wahrscheinlichkeit der Komplexbildung steigen, also daraus nicht unbedingt eine Abnahme der Relaxationserscheinungen folgen (Zwischengitteratome bilden mit Fremdatomen oft sogenannte "nicht sättigende Komplexe", wobei jedes hinzukommende Zwischengitteratom die Bindungsenergie nicht ändert bzw. noch erhöht, so daß ein Fremdatom als Keimzelle sehr großer Komplexe fungieren kann).

Unter dem Gesichtspunkt der PAD-Experimentiertechnik läßt sich aus den vorstehenden Argumenten der Festkörperphysik zwar eine zeitabhängige Störwechselwirkung ableiten, aber keinesfalls über größere Temperaturbereiche der zur einfachen Interpretation notwendige Abragam und Pound-Fall. Qualitativ läßt sich eher eine Mischung aus den statischen Effekten, wie sie im Fall der PAC/PAD-Experimente in verdünnten Legierungen auftraten (6.2.2) und der exponentiellen Dämpfung des Abragam und Pound-Ansatzes vermuten, das bedeutet sowohl Amplitudenabnahme $A_2 \rightarrow \hat{\hat{A}}_2$ als auch Relaxation als Funktion der Zeit, $e^{-\lambda_2 t}$, wobei auch im statischen Falle eine Dämpfung dieser Form auftritt, was die Interpretation weiter kompliziert. Mit fallender Temperatur dominiert die Amplitudenabnahme immer stärker bis zur Fehlstellensättigung, ob dann noch Anisotropie übrig bleibt, hängt von der Stärke der Quadrupolkopplung ab. Genau diese Deutung spiegelt sich in den zeitdifferentiellen Spektren der Abb. 21 wieder. Amplitudenabnahme $A_2 \rightarrow \hat{A}_2$ und Relaxation $e^{-\lambda_2 t}$ sind konkurrierende Prozesse, zur exakten Beschreibung muß eine Theorie mit beliebig variierbarer Korrelationszeit verwendet werden.

Eine besonders wichtige Fragestellung, ob die Cd-Sonde die Strahlenschädigung ihrer Umgebung unabhängig von ihrem Charakter als Fremdatom zeigt, oder ob konzentrationsverändernde Bindungseffekte auftreten, kann mit dem vorliegenden experimentellen Material nicht beantwortet werden.

Bei dem Experiment von ^{73}As in Ge ist die Wahrscheinlichkeit einer Korrelation zwischen der Sonde und Gitterfehlstellen sehr viel größer. Eine extrem hohe Bindungsenergie des Komplexes As-Leerstelle (1-2 eV)[76] und ähnlich hohe Bindungsenergien für Mehrfachleerstellen begünstigen die Bildung stabiler Cluster. Welche Diffusionsbewegung die zeitlich veränderliche Wechselwirkung hervorruft, läßt sich nicht einfach folgern. Vermutlich muß die Korrelationszeit aus einer Überlagerung verschiedener Prozesse gebildet werden. Eine genaue Einschränkung des Gültigkeitsbereichs der Abragam und Pound-Theorie läßt sich nur bei Kenntnis der entsprechenden Diffusionsprozesse angeben (siehe dazu die Diskussion bei Sielemann[54]).

Allen Messungen gemeinsam ist die Tatsache, daß die Relaxationserscheinungen mit wachsender Konzentration stets abnehmen, also eine Fremdatomsonde mit ihrem anziehenden Potential für Gitterfehlstellen nicht in der Lage ist, die höhere Beweglichkeit dieser Gitterfehlstellen mit steigender Temperatur zum Einfang auszunutzen.

Dieses "Einfangen" läßt sich jedoch an einem anderen Fall studieren: Das SOPAD-Experiment ^{109}Cd in Ag wurde in einer Ag-Au-Legierung mit 0.1 At.% Goldanteil ausgeführt[70]. Abb. 22 zeigt die stroboskopischen Resonanzamplituden als Funktion der Temperatur. Auffallend ist, daß hier im Gegensatz zu allen Messungen in "reinen" Matrizen eine Zunahme der Relaxationswirkung mit steigender Temperatur auftritt. Legt man zu jeder Zeit eine statistische Verteilung der Au-Atome in der Ag-Matrix zugrunde, so kann ein solcher Effekt nicht auftreten; die Relaxationswirkung kann sich mit kleiner werdender Korrelationszeit nicht verstärken, da sowohl die Relaxationszeit T_1 wie T_2 in der gestörten Winkelverteilung auftritt[77]. Eine Deutung liegt darin, daß die Au-Atome in die Störstellenzone um die Sondenatome hineindiffundieren und dort "eingefangen" werden, also dort eine erhöhte Aufenthaltswahrscheinlichkeit haben. Da die Anzahl der Au-Atome in der gesamten Matrix konstant bleibt, können solche "Einfangeffekte" nicht, wie möglicherweise bei der strahlungsinduzierten Störstellenrelaxation, durch Ausheilprozesse kompensiert werden. Die Wechselwirkung mit den Legierungsatomen ist im Gegensatz zu der Wechselwirkung mit den Gitterfehlstellen des Abbremsprozesses ein stationärer Prozeß.

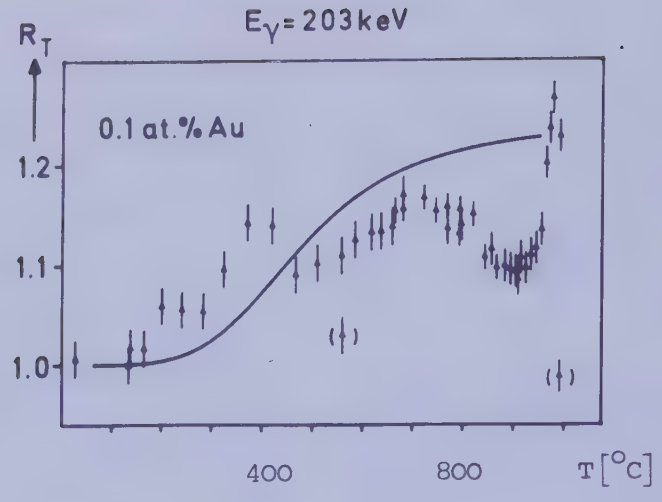


Abb. 22: Stroboskopische Resonanzamplitude von ^{109}Cd in einer Ag-Au-Legierung mit 0.1 at.% Au als Funktion der Targettemperatur. Die ausgezogene Kurve stellt die Anpassung für reines Ag (Abb. 20) dar.

6.2.5 Zusammenfassung

Die in den Abschnitten 6.2.1 bis 6.2.4 diskutierten Beispiele und Modelle zeigen, wie unterschiedlich die Wirkung von Symmetrie- und Ladungsstörungen auf die PAC/PAD-SOPAD-Experimente ist, abhängig davon, ob die Störung als einzige Wechselwirkung auftritt oder im Zusammenhang mit statischer magnetischer Wechselwirkung. Eine statische Störwechselwirkung H_Q^{Pert}, die als einzige Wechselwirkung eine starke Abschwächung der Anisotropie innerhalb weniger 100 nsec bewirkt, tritt bei zusätzlicher starker magnetischer Wechselwirkung mit einem externen Feld nur als verhältnismäßig schwache Störung auf. Das Magnetfeld übt die Funktion eines "holding-field" aus. Diese schwache Störung läßt sich empirisch beschreiben durch eine Amplitudenabschwächung zur Zeit t^{obs} und eine Relaxationswirkung als Funktion der Zeit t.

Da bei vielen PAD-Experimenten, die in der Literatur beschrieben sind, $A_2(t = 0)$ nicht streng bekannt ist (z.B. aus einer Messung in einem flüssigen Metall), und die zeitliche Abschwächung ausgedrückt durch $G_2(t)$ wegen mangelnder Frequenzauflösung (Lebensdauer des Zustands) oder ungenauer Auswertung nicht exakt bestimmt werden kann, ist die Aussage, daß bei dem Ex-

periment keine Störungen durch Gitterfehler vorliegen, möglicherweise oft unkorrekt; ein PAD-Experiment ohne externes Magnetfeld gibt bei statischer Wechselwirkung sehr viel empfindlicher Auskunft über Gitterstörungen.

Nur im Grenzfall sehr schnell fluktuierender Störungen ergibt sich eine "entkoppelte" Beschreibung[55,68] der statischen magnetischen Wechselwirkung und der Störwechselwirkung,

$$A_k G_k(t) = A_k(t=0)\, e^{-\lambda_k t} \cdot \cos(\omega_L t - \varphi) \qquad (6.9)$$

die Abschwächung der Anisotropie ist dann mit und ohne Feld gleich.

Es zeigt sich, daß die Konzentration der Strahlenschädigung (Fehlstellen) mit maximal ca. 1%, wie sich aus den festkörperphysikalischen Überlegungen ergibt, mit den Ergebnissen der PAD-Experimente in der Größenordnung verträglich ist; eine endgültige Beantwortung der Frage, ob die effektive Konzentration um Fremdatomsonden durch attraktive Korrelationseffekte größer ist als um Matrixatomsonden, kann hier noch nicht gegeben werden. Das nächstliegende Experiment zur Entscheidung dieser Frage ist die Untersuchung der Relaxationseffekte des ^{69}Ge in Zn und der Vergleich mit den Daten von ^{67}Zn in Zn. Dieses Experiment ist in Vorbereitung, während sich bei den kubischen Gastgittern noch kein solches Experiment abzeichnet.

Die bekannten experimentellen Daten und theoretischen Untersuchungen über Bindungsenergien von Fremdatomen und Gitterfehlstellen in Metallen zeigen keinen eindeutigen Zusammenhang zwischen Valenzunterschied und Bindungsenergie[78]. In einem Modell von Friedel[71] steigt die Bindungsenergie zwischen Fremdatom und Leerstelle mit wachsender Valenzdifferenz, diese Aussage scheint jedoch übersimplifiziert zu sein. Daher ergibt sich keine voraussagbare Relaxationstendenz in Abhängigkeit vom Valenzunterschied ΔZ zwischen Matrix und Fremdatom. Da die erzeugten Fehlstellen jedoch bei kombinierter Wechselwirkung zu einer Amplitudenschwächung führen, sind Reaktionen mit hoher Alignmentausbeute bevorzugt, also z.B. (α,xn)-Reaktionen.

Die Möglichkeiten zur Messung von Diffusionsparametern mit der PAD/SOPAD-Methode sind solange sehr beschränkt, wie sich die Analyse der Ergebnisse zeitabhängiger Wechselwirkung lediglich auf den Abragam und Pound-Fall stützen muß. Denn einmal ist die notwendige Stationarität des Vorgangs, d.h. $\langle\omega_E^2\rangle$ und τ_c etwa konstant während der Lebensdauer τ des Kernzustands wegen schneller Ausheilprozesse nicht gewährleistet, und zum zweiten dürfte die Be-

dingung $\sqrt{<\omega_E^2>}\,\tau_c \ll 1$ nur in beschränkten, hohen Temperaturbereichen gelten. Die in bisherigen Analysen verschiedener Experimente gegebenen Daten für Anregungsenergien bestimmter Bewegungsvorgänge sind daher mit einigem Vorbehalt zu betrachten.

Anhang

Quadrupolmomente von $5/2^-$- und $9/2^+$-Kernzuständen in Ge und Zn

Die ungeraden Zn- und Ge-Isotope haben ein unpaariges Neutron und damit im Rahmen des Einteilchen-Schalenmodells kein Quadrupolmoment (Q-Moment). Experimentelle Ergebnisse in dieser Massengegend zeigen jedoch für Kerne mit ungerader Neutronenzahl etwa gleich große Quadrupolmomente wie für Kerne mit ungerader Protonenzahl entsprechender Teilchenkonfiguration. Für die Beschreibung der Kerne im Massenbereich A = 70 sind weder das Einteilchenmodell noch ein Modell mit statischer Deformation eine gute Näherung. Sowohl die Protonen- wie die Neutronenzahl liegen weitab geschlossener Schalen, das bedingt im allgemeinen eine Konfigurationsmischung mehrerer unaufgefüllter Schalen für die Wellenfunktionen der Kernzustände.

Ein Ansatz zur Beschreibung dieser Situation ist das Konfigurationsmischungsmodell von Arima und Horie[1]. Sein wesentlichstes Anwendungsgebiet liegt bisher in der Berechnung der Abweichung magnetischer Momente vom Schmidtwert. Ausgehend von einer Einteilchen-Schalenmodellkonfiguration werden durch Störungsrechnung 1. Ordnung diejenigen Konfigurationen beigemischt, die mit dem Zustand nullter Ordnung ein nichtverschwindendes Matrixelement für den Operator des magnetischen Moments haben (M1 Rumpfpolarisation). Für die Berechnung des Q-Moments sind es die Beimischungen von Einteilchen - Protonenzuständen, die durch den Operator des Q-Moments mit dem Zustand nullter Ordnung verknüpft sind (E2 Rumpfpolarisation). Die Beimischung anderer Neutronenzustände bringt im Rahmen des Schalenmodells keinen Beitrag zur Ladungsverteilung (Q-Moment).

Der Erfolg des Konfigurationsmischungsmodells ist für den geschilderten Massenbereich an mehreren Beispielen abzulesen.[79,80] Außerdem gestattet eine Reihe bekannter Q-Momente ein einfaches "Anhängen" unbekannter Momente mit ähnlicher Teilchenkonfiguration, das heißt man betrachtet die Veränderung der Nukleonenzahl gegenüber einem Kern bekannten Moments und versucht, die Größe der damit verbundenen Veränderung des Q-Moments im Rahmen des Modells vorherzusagen.

Das Q-Moment im Rahmen der Theorie von Arima und Horie läßt sich schreiben als:

$$Q = -\left[(2j+1-2N)/(2j+2)\right]\tilde{Q}_0 \qquad \text{(A1)}$$

dabei ist j der Drehimpuls des unpaarigen Nukleons und N die Zahl der Nukleonen in der gleichen Schale j wie das unpaarige Nukleon.

$\tilde{Q}_o$ ist der Betrag der E2-Rumpfpolarisation. Nach Byron et al.[81] läßt sich der Vorfaktor $\{-[(2j + 1 - 2N)/(2j + 2)]\}$ als Ausdruck der Schalenmodellstruktur auffassen. Das läßt sich aus der Form leicht ablesen: Für eine halbgefüllte Schale ist der Ausdruck gerade gleich Null, das bedeutet eine kugelsymmetrische Verteilung der Nukleonen, und es resultiert kein Q-Moment. Für eine Schale mit überwiegend Teilchencharakter (weniger als halb gefüllt) ergibt sich ein negativer Vorfaktor, also ein negatives Q-Moment, da, wie sich aus den Rechnungen nach Arima und Horie[1] ergibt, $\tilde{Q}_o$ stets eine positive Größe ist (siehe dazu auch Referenz 81). Für eine Schale mit Lochcharakter (mehr als halb gefüllt) ist es umgekehrt, hier gibt es eine prolate Deformation. $\tilde{Q}_o$ als Summe aller Rumpfpolarisationsbeiträge ist dann etwa ein Maß für die Polarisierbarkeit der Protonen durch das unpaarige Neutron. Die Anwendbarkeit dieser Vorstellungen auf die Zink-Isotope wird von Laulainen et al.[80] demonstriert und soll in dieser Arbeit auf die benachbarten, hier interessierenden Zn- und Ge-Zustände übertragen werden.

Um jedoch feinere Effekte der Schalenmodellkonfiguration im Rahmen der Theorie nach Arima und Horie diskutieren zu können, ist es sinnvoll, nach der genaueren Besetzungszahl N der spinbestimmenden Neutronenschale zu fragen, als sie die Konfiguration nullter Ordnung angibt. Eine nichtganzzahlige Besetzungswahrscheinlichkeit dieser Schale, hervorgerufen durch eine Ausschmierung der Fermikante unter dem Einfluß von Paarungskräften, tritt im Bereich mehrerer fast entarteter Schalen sicher auf. Mit zunehmender Neutronenzahl sollte sich dadurch eine allmähliche Auffüllung der Neutronenschale ergeben.

Die Berechnung magnetischer Momente der Kadmium-Zinn-Isotope[82] ergibt mit dieser Erweiterung des Konfigurationsmischungsmodells eine wesentliche Verbesserung in der Interpretation experimenteller Daten. In der folgenden Diskussion soll entsprechend eine Abschätzung der Q-Momente in verschiedenen Ge-Isotopen versucht werden. Mögliche Strukturunterschiede in der Protonenkonfiguration, trotz gleicher Protonenzahl möglicherweise vorhanden, können damit allerdings nicht erfaßt werden. Neben den Ge-Isotopen werden auch einige Zn-Isotope behandelt, die sich um nur ein Protonenpaar von den Ge-Isotopen unterscheiden.

Besetzungszahlen der Neutronenschalen $1g_{9/2}$ und $1f_{5/2}$ für Ge- und Zn-Isotope

Fournier et al.[83] ermitteln aus (p,d)-Kernreaktionen auf die geraden Ge-Isotope spektroskopische Faktoren und erhalten daraus die Besetzungswahrscheinlichkeiten V_j^2 für Neutronenpaare in den nichtabgeschlossenen Schalen $2p_{3/2}$, $1f_{5/2}$, $2p_{1/2}$ und $1g_{9/2}$. Daraus erhalten wir die hier interessierenden Besetzungszahlen für die $1f_{5/2}$-und $1g_{9/2}$-Schale für die Kerne ^{71}Ge und ^{73}Ge. Eine Zusammenstellung weiterer spektroskopischer Daten im Bereich der Neutronenzahl $28 < N < 48$ für verschiedene Elemente zeigt, daß die Besetzung sämtlicher angegebener Neutronenschalen durch das Paarungsmodell in diesem Massenbereich gut wiedergegeben wird; dies läßt sich aus Abb. 23 für die $1f_{5/2}$- und $1g_{9/2}$-Schale entnehmen.

Die mittlere Besetzungszahl n_j einer j-Schale im Rahmen des Paarungsmodells läßt sich schreiben als

$$n_j = V_j^2(2j + 1).$$

Ein g-u Kern koppelt in diesem Modell den Einteilchenzustand an die Paarwellenfunktionen (Einquasiteilchenzustand).

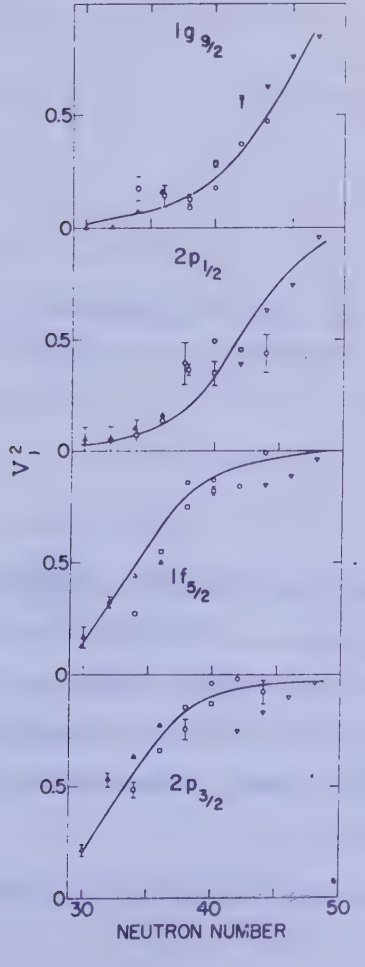


Abb. 23:

Besetzungswahrscheinlichkeiten der $1f_{5/2}$- und $1g_{9/2}$-Neutronenschalen für Kerne zwischen $28 < N < 48$ und Vergleich mit den Rechnungen der Paarungstheorie (durchgezogene Kurve), die Abb. entstammt Ref. 83.

Die Q-Momente sind also abhängig:

i) vom Vorfaktor, d.h. der Anzahl von Neutronen in der Spin-bestimmenden j-Schale,

ii) von $\tilde{Q}_o$, das wiederum abhängig ist von der Protonenkonfiguration und von den Quantenzahlen des Spin-bestimmenden Neutrons.

$9/2^+$-Zustände in $^{67,69,71,73}Ge$

Experimentell bekannt: $Q(^{73}Ge) = -0.17(3)b$[79].
Außerdem wurde aus einer Messung von Ge in flüssigem Ga $Q(^{71}Ge)$ zu $0.28(10)b$[84] bestimmt unter der Voraussetzung, daß der EFG von Ge in Ga gleich dem von Ga in Ga ist.

i) Die Anzahl der Neutronen in der $g_{9/2}$-Schale läßt sich für die geraden Ge-Isotope aus Tabelle 9 entnehmen:
für $N \leq 38$ ergibt sich eine schwach mit der Neutronenzahl steigende Besetzungswahrscheinlichkeit, für $N > 38$ erfolgt ein schnelleres Anwachsen der Besetzungswahrscheinlichkeit.

ii) Die Anzahl der Protonen bleibt gleich für alle Isotope. Damit postulieren wir die Gleichheit von $\tilde{Q}_o$ für alle diese Isotope, dies sollte in erster Näherung gerechtfertigt sein.

Schluß:
Aus $Q(^{73}Ge)$ wird $\tilde{Q}_o$ berechnet:
Mit $n_{9/2} = 2.8$ und $Q(^{73}Ge) = -0.17b$ folgt aus (A1):

$$\tilde{Q}_o = 0.43b$$

Damit lassen sich die Q-Momente der Isotope mit den Besetzungszahlen $n_{9/2}$ berechnen:

$Q(^{71}Ge)$: $\approx -0.23\,b$
$Q(^{69}Ge)$: $\approx -0.25\,b$
$Q(^{67}Ge)$: $\approx -0.28\,b$

Fehlergrenzen sind für diese theoretischen Resultate schwer anzugeben, aber eine Abschätzung für die obere und untere Grenze aller Werte läßt sich machen: Die Besetzungszahlen der 9/2-Schale für alle Isotope liegen mit Sicherheit zwischen $n_{9/2} = 1$ und $n_{9/2} = 3$. Da $n_{9/2}$ von ^{73}Ge eine experimentelle Größe ist, sollte $\tilde{Q}_o$ aus $Q(^{73}Ge)$ gut bestimmt sein, damit liegen sämtliche Momente zwischen $-0.15\,b$ ($n_{9/2} = 3$) und $-0.32\,b$ ($n_{9/2} = 1$).

In Abschnitt 4.4 der vorliegenden Arbeit wurde das Verhältnis bestimmt:

$$|Q(^{67}Ge)| : |Q(^{69}Ge)| = 1.22 : 1 \ (\pm 1\%)$$

Dies bestätigt recht gut die Voraussage des betrachteten Modells. Da $N^{max} = 2j + 1 = 10$, ergibt sich für alle Isotope ein negatives Moment. Dies stimmt mit dem experimentellen Ergebnis von $Q(^{73}Ge)$ überein.

$5/2^-$-Zustände in $^{69,71}Ge$

Experimentell bekannt: $Q(^{69}Ge) = +0.028(6)\ b$ [79].

i) Die Isotope haben 37 bzw. 39 Neutronen, die Spin-bestimmende Schale ist $1f_{5/2}$. $N^{max} = 6$, durch die Änderung des Vorfaktors in (4.1) bei einem zusätzlichen Neutron in dieser Schale ergibt sich eine Änderung des Q-Moments um $Q^{max}/2$; Q^{max} ist hier definiert als Formel (A1) mit N = 1 (bzw. 5). Die Q-Momente für Zustände dieser Schale sind aus diesem Grund im Vergleich mit denen der $9/2^+$-Schale erheblich empfindlicher auf kleine Änderungen der Besetzungszahl der Spin-bestimmenden Schale (dort ändert sich der Vorfaktor nur um $Q^{max}/4$ pro zusätzlichem Neutron).

Außerdem zeigt Abb. 23, daß die Besetzungswahrscheinlichkeit der $f_{5/2^-}$ Schale für $30 < N \leq 38$ stark mit N zunimmt, man liest aus der Kurve ab:

$V_j^2\ (N = 36) \approx 0.65$

$V_j^2\ (N = 38) \approx 0.80$

ii) Wie bei den 9/2-Zuständen ergibt sich kein Einfluß auf $\tilde{Q}_o$.

Schluß:

Wegen der starken Variation der Besetzungszahl mit der Neutronenzahl und der großen Empfindlichkeit des Vorfaktors von (4.1) bezüglich Änderungen der Besetzungszahl sind Vorhersagen über die Momente nur unzureichend möglich, hier wird deshalb nur der Schluß gezogen:

$$|Q(^{71}Ge)| > |Q(^{69}Ge)|,$$

da die Besetzungszahl in beiden Fällen größer ist als $N^{max}/2$. Das wegen des Lochcharakters erwartete positive Vorzeichen stimmt wiederum mit dem Experiment für ^{69}Ge überein.

Aus experimentellen Daten ergibt sich folgende Abschätzung für $Q(^{71}Ge)$: Das Verhältnis $|Q(^{69}Ge, 9/2^+)| : |Q(^{71}Ge, 5/2^-)| = 1 : 0.219(\pm 2\%)$ ist ein Ergebnis der vorliegenden Arbeit (Abschnitt 4.4). Mit der Abschätzung für

$|Q(^{69}Ge, 9/2^+)|$ zu 0.25 b (siehe vorher) läßt sich das unbekannte Moment angeben zu:

$$|Q(^{71}Ge, 5/2^-)| \approx 0.05\,b \quad \text{(Fehler} \approx \pm 50\%).$$

Damit wird qualitativ die Schlußfolgerung des Paarungsmodells bestätigt.

Diskussion der $5/2^-$-Zuständе von ^{65}Zn und ^{67}Zn

Experimentell bekannt: $Q(^{65}Zn) = -0.024(2)\,b$[33] ; $Q(^{67}Zn) = 0.150(15)\,b$[33] . Diese Momente spielen in der vorliegenden Arbeit keine Rolle, sind aber experimentell bekannt und sollen kurz mit den Besetzungswahrscheinlichkeiten aus Abb. 23 behandelt werden.

$V_j^2\ (^{64}_{30}Zn_{34}) = 0.25$ $\qquad$ $n_{5/2}(^{65}Zn) \approx 2.5$

$V_j^2\ (^{66}_{30}Zn_{36}) = 0.60$ $\qquad$ $n_{5/2}(^{67}Zn) \approx 4.6$

Die Änderung von V_j^2 mit N ist hier noch ausgeprägter als bei den $5/2^-$-Zuständen in $^{69,71}Ge$.

^{65}Zn liegt also wesentlich dichter an $N^{max}/2 = 3$ als ^{67}Zn; der sehr kleine experimentelle Wert für ^{65}Zn zeigt in der Tat, daß sich ca. 3 Neutronen in der $f_{5/2}$-Schale befinden. Der große Unterschied der Momente läßt sich zwanglos mit den schon bei den $5/2^-$-Zuständen in Ge angeführten Gründen erklären. Selbst die Vorzeichen sind mit den Vorhersagen des Paarungsmodells richtig angegeben, negativ für $^{65}Zn(N < 3)$ und positiv für $^{67}Zn(N > 3)$.

Der Zusammenhang zwischen den $5/2^-$-Zuständen in Ge und Zn wird nicht untersucht, die Gründe ergeben sich aus dem bisher gesagten: 1) es ändert sich $\tilde{Q}_o$, und selbst wenn diese Größe für beide Elemente relativ zueinander abschätzbar ist, kann eine p-n-Restwechselwirkung die Besetzungszahlen der $f_{5/2}$-Schale bei gleicher Neutronenzahl ändern, was die einheitliche Beschreibung der Ge- und Zn-Zustände unmöglich macht.

Vergleich der $9/2^+$-Zuständе von ^{67}Zn und ^{69}Ge

Hier ist ein Vergleich von Zn und Ge eher möglich, da die 9/2-Schale unempfindlicher gegen kleine Besetzungszahlunterschiede ist. Der Vergleich wird also ausgeführt mit folgenden Annahmen:

i) Der Vorfaktor sei für beide Kerne mit N = 37 identisch,

ii) Zn hat zwei Protonen weniger als Ge, diese Differenz sollte in der $(2p_{3/2})$- und $(1f_{5/2})$-Schale auftreten.

Damit ergeben sich die Unterschiede in der Protonenkonfiguration nullter Ordnung:

$$^{67}Zn: \quad (2p_{3/2})^2$$

$$^{69}Ge: \quad (2p_{3/2})^4 \quad \text{oder} \quad (2p_{3/2})^2 \, (1f_{5/2})^2$$

Der Einfluß auf die E2 Rumpfpolarisation läßt sich leicht abschätzen: Die Protonenkonfiguration $(2p_{3/2})^2$ in ^{67}Zn führt zu zwei wesentlichen Beiträgen der E2 Polarisation[1]:

$$(2p_{3/2})^2 \longrightarrow (2p_{3/2})^1 \, 2p_{1/2}$$

$$(2p_{3/2})^2 \longrightarrow (2p_{3/2})^1 \, 2f_{7/2}$$

Diese Beiträge sind linear in der Besetzungszahl der $2p_{3/2}$ -Schale, im Fall des ^{69}Ge mit vier Teilchen sind sie doppelt so groß wie im Fall des Zn mit zwei Teilchen. Insgesamt liegt der Beitrag der $2p_{3/2}$ -Schale zur Rumpfpolarisation aber nur bei weniger als 10% des Gesamtbeitrages, die Änderungen zwischen Zn und Ge sind also nur klein. Bei Besetzung der $1f_{5/2}$ -Schale in Ge ergeben sich zu den verstärkenden Rumpfpolarisationsbeiträgen auch noch abschwächende ("blocking"), die sich gegenseitig etwa kompensieren. Zusammenfassend läßt sich folgern, daß Ge die etwas stärkere Polarisierbarkeit $\tilde{Q}_o$ besitzt und dadurch ein geringfügig größeres Moment hat als Zn. Dieser Schluß kann aber durch mögliche kleine Unterschiede in der Neutronenbesetzung der 9/2-Schale wieder aufgehoben werden. Für das Moment $|Q|$ des ^{67}Zn folgern wir somit: $|Q(^{67}Zn)| \lesssim |Q(^{69}Ge)|$, also ca. 0.20 b .

Tabelle 9: Besetzungswahrscheinlichkeiten v_j^2 der $1g_{9/2}$-Neutronenschale für die geradzahligen Ge-Isotope als Funktion der Neutronenzahl N. Die Daten sind die experimentellen Ergebnisse aus Ref. 83 bzw. aus der Kurve (Abb. 23) abgeschätzt. Die dritte Spalte enthält die extrahierten Besetzungszahlen der g-u-Kerne.

N	v_j^2 (j = 9/2)	$n_{9/2}$
34	≈ 0.06	1.6(^{67}Ge)
36	≈ 0.08	1.8(^{69}Ge)
38	0.10	2.0(^{71}Ge)
40	0.18	2.8(^{73}Ge)

Tabelle 10: Zusammenfassung der Ergebnisse der diskutierten Q-Momente in Ge und Zn. Verglichen sind die Werte aus der E2 Rumpfpolarisationstheorie (Q^{RP}) und, soweit vorhanden, experimentelle Daten (Q^{Exp}).

Kern	Zustand	N	Q^{RP}[b]	Q^{Exp}[b]
^{67}Ge	$9/2^+$	35	-0.27	--
^{69}Ge	$9/2^+$	37	-0.25	--
^{71}Ge	$9/2^+$	39	-0.23	--
^{73}Ge	$9/2^+$	41	--	-0.17(3) [79]
^{67}Zn	$9/2^+$	37	≈0.20	--
^{69}Ge	$5/2^-$	37	--	+0.028(6) [79]
^{71}Ge	$5/2^-$	39	≈0.05	--
^{65}Zn	$5/2^-$	35	$\lvert Q(^{65}Zn)\rvert <$	-0.024(2) [33]
^{67}Zn	$5/2^-$	37	$< \lvert Q(^{67}Zn)\rvert$	+0.150(15) [33]

Schlußbemerkung

Die in Abschnitt 5. beschriebene Modellvorstellung für den EFG an Fremdatomen konnte inzwischen durch systematische Messungen erhärtet werden. Der EFG am Kern $^{67}Ge(9/2^+)$ in verschiedenen polyvalenten Metallen zeigt die beschriebene Variation als Funktion der Valenzdifferenz δZ[85]. Von besonderem Interesse ist eine Messung von $^{73}As(9/2^+)$ in Zn[87]; die von den Autoren angegebene Frequenz $\frac{e^2Qq}{h}$ ist mehr als dreimal kleiner als für $^{69}Ge(9/2^+)$ in Zn (Abschnitt 4.). Die Q-Momente für beide Zustände sollten etwa gleich sein (nach der Regel, daß das Q-Moment einer Protonenkonfiguration etwa dem der entsprechenden Neutronenkonfiguration entspricht). Dies spricht für eine Abschwächung des EFG in Zn am Kernort von As, die für eine Valenzdifferenz $\Delta Z = +3$ durch die beschriebene Modellvorstellung (Abb. 11) anzunehmen wäre.

Weitere Experimente zur Stützung der Modellvorstellung in Abschnitt 5. sollten Messungen der Temperaturabhängigkeit der Quadrupolkopplungsfrequenz von Fremdatomen in Metallen mit großer Wertigkeitsdifferenz ΔZ sein. Zumindest ein Teil der T-Abhängigkeit läßt sich als proportional zur Zustandsdichte der Leitungselektronen an der Fermikante schreiben[12]; dies sollte zu entsprechenden Abweichungen zwischen der T-Abhängigkeit in der reinen Matrix und für das Fremdatom darin führen. Vorläufige Ergebnisse für Ge in Zn scheinen diese Annahme zu bestätigen.

Literaturverzeichnis

1 A. Arima and H. Horie, Progr. Theoret. Phys. 12 (1954) 623;
H. Noya, A. Arima, and H. Horie, Progr. Theoret. Phys. Suppl. 8 (1958) 33.

2 J. Friedel, Phil. Mag. 43 (1952) 153
J. Friedel, Suppl. Nuovo Cimento 2 (1958) 287.

3 H. Bertschat, J. Christiansen, H.-E. Mahnke, E. Recknagel, G. Schatz, R. Sielemann, and W. Witthuhn, Phys. Rev. Lett. 25 (1970) 102.

4 J. Bleck, R. Butt, H.Haas, W. Ribbe, and W. Zeitz, Phys. Rev. Lett. 29 (1972) 1371.

5 E. Bodenstedt, U. Ortabasi, and W.H. Ellis, Phys. Rev. B6 (1972) 2909.

6 D. Brandt and S.S. Rosenblum, Suppl. J. Phys. Soc. Jap. 34 (1973) 178.

7 R. Butt, H. Haas, and S.S. Rosenblum, Phys. Rev. B9 (1974) 3705.

8 N.C. Mohapatra, C.M. Singal, T.P. Das, and P. Jena, Phys. Rev. Lett. 29 (1972) 456.

9 P. Jena, S.D. Mahanti, and T.P. Das, Phys. Rev. B7 (1973) 975.

10 N.C. Mohapatra, C.M. Singal, and T.P. Das, Phys. Rev. Lett. 31 (1973) 530.

11 E.H. Hygh and T.P. Das, Phys. Rev. 143 (1966) 452.

12 R.E. Watson, A.C. Gossard, and Y.Yafet, Phys. Rev. 140 (1965) A375.

13 K.C. Das and D.K. Ray, Phys. Rev. 187 (1969) 777.

14 T.P. Das and M. Pomerantz, Phys. Rev. 123 (1961) 2070.

15 F.J. Blatt, Phys. Rev. 108 (1957) 285.

16 D.E. Farrell, J.H. Tripp, and T.J. Harding, Phys. Rev. B1 (1970) 4533.

17 W. Kohn and S.H. Vosko, Phys. Rev. 119 (1960) 912.

18 H. Frauenfelder and R.M. Steffen, in Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, ed. K. Siegbahn, Vol. 2 (North-Holland, Amsterdam, 1965).

19 J. Christiansen, H.-E. Mahnke, E. Recknagel, D. Riegel, G. Weyer, and W. Witthuhn, Phys. Rev. Lett. 21 (1968) 554;
J. Christiansen et al., Phys. Rev. C1 (1970) 613;
H.-E. Mahnke, Diplomarbeit, FU Berlin 1968.

20 H. Bertschat, H.Haas, W. Leitz, U. Leithäuser, K.H. Maier, H.-E. Mahnke, E. Recknagel, W. Semmler, R. Sielemann, B. Spellmeyer, and Th. Wichert, Suppl. J. Phys. Soc. Jap. 34 (1973) 217.

21 W. H. Zoller, G.E. Gordon, and W.B. Walters, Nucl. Phys. A137 (1969) 606.

22 M.G. Betigeri, P. David, J. Debrus, H. Mommsen, and A. Riccato, Nucl. Phys. A171 (1971) 401.

23 E.A.C. Lucken, Nuclear Quadrupole Coupling Constants (Academic Press, London, 1969).

24 M.H. Cohen, Phys. Rev. 96 (1954) 1278.

25 M.I. Valic and D.L. Williams, J. Phys. Chem. Solids 30 (1969) 2337.

26 M.I. Valic and D.L. Williams, J. Phys. Chem. Solids 33 (1972) 1583.

27 F.D. Feiock and W.R. Johnson, Phys. Rev. 187 (1969) 39.

28 C.A. Sholl, Proc. Phys. Soc. 91 (1967) 130.

29 A.J.F. Boyle, D.St.P. Bunbury, and C. Edwards, Proc. Phys. Soc. 79 (1962) 416.

30 H.Haas and D.A. Shirley, J. Chem. Phys. 58 (1973) 3339.

31 R.S. Raghavan and P. Raghavan, Phys. Rev. Lett. 28 (1972) 54.

32 R.S. Raghavan, P. Raghavan, and J.M. Friedt, Phys. Rev. Lett. 30 (1973) 10.

33 G.H. Fuller and V.W. Cohen, in Nuclear Data Tables A Vol. 5 (1969) 433.

34 K. Murakawa, Phys. Rev. 100 (1955) 1369.

35 H. Bertschat, E. Recknagel, and B. Spellmeyer, Phys. Rev. Lett. 32 (1974) 18.

36 P. Raghavan and R.S. Raghavan, Phys. Rev. Lett. 27 (1971) 724.

37 R.R. Hewitt and T.T. Taylor, Phys. Rev. 125 (1962) 524.

38 J.C. Soares, K. Krien, A.G. Bibiloni, K. Freitag, and R. Vianden, Phys. Lett. 45A (1973) 465.

39 R.R. Hewitt and B.F. Williams, Phys. Rev. 129 (1963) 1188.

40 Landort-Börnstein II, Zahlenwerte und Funktionen (Springer-Verlag , Berlin-Heidelberg-New York, 1971).

41 D.A. Rigney and C.P. Flynn, Phil. Mag. 15 (1967) 1213.

42 E. Daniel, J. de Phys. et le Rad. (1959) 769.

43 J.A. Rigert and C.P. Flynn, Phys. Rev. Lett. 26 (1971) 1177.

44 C.P. Flynn, Point Defects and Diffusion (Clarendon Press, Oxford, 1972).

45 A. Messiah, Quantum Mechanics, Vol. 1, (North-Holland, Amsterdam, 1965).

46 N.F. Mott and H.S.W. Massey, The Theory of Atomic Collisions (Oxford University Press, Oxford, 1965).

47 G. Grawert, Quantenmechanik Band 1 (Akademische Verlagsanstalt, Frankfurt a.M. 1969).

48 C. Kittel, Quantentheorie der Festkörper (R. Oldenbourg, München-Wien, 1970).

49 O. Kanert and M. Mehring, in "NMR-Grundlagen und Fortschritte", eds. P. Diehl et al., Vol. 3 (Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 1971).

50 G.W. Hinman, G.R. Hoy, J.K. Less, and J. C. Serio, Phys. Rev. 135 (1964) A206.

51 R.T. Schumacher and G. Schnakenberg, Solid State Commun. 7 (1969) 1735.

52 E.L. Elkin and G.D. Watkins, Phys. Rev. 174 (1968) 881.

53 G. Schnakenberg and R.T. Schumacher, Phys. Rev. B7 (1973) 2292.

54 R. Sielemann, Diplomarbeit, FU Berlin 1970.

55 A. Abragam and R.V. Pound, Phys. Rev. 92 (1953) 943.

56 W. Hume-Rothery, R.E. Smallman, and C.W. Haworth, The Structure of Metals and Alloys (Institute of Metals, London, 1969).

57 H.J. Wollenberger, in Vacancies and Interstitials in Metals, eds. A. Seeger et al. (North-Holland, Amsterdam, 1970).

58 J.R. Beeler, Phys. Rev. 150 (1966) 470.

59 M.W. Thompson, Defects and Radiation Damage in Metals (Cambridge University Press, Cambridge, 1969).

60 D.G. Doran, rad. effects 2 (1970) 249.

61 E. Bozek, J. Golczewski, Pham Hung, M. Rybicka, P. Wodniecki, and W. Semmler, wird veröffentlicht.

62 M. Behar and R.M. Steffen, Phys. Rev. Lett 29 (1972) 116; Phys. Rev. C7 (1973) 788.

63 C.A. Giffels, G.W. Hinman, and S.H. Vosko, Phys. Rev. 121 (1961) 1063.

64 A.J. Pustowka, B.D. Sawicka, and J.A. Sawicki, Phys. Stat. Sol. b57 (1973) 783.

65 H. Bertschat, H. Haas, F. Pleiter, E. Recknagel, E. Schlodder, B. Spellmeyer, HMI-Jahresbericht 1973.

66 E. Bozek, R. Broda, J. Golcsewski, Pham Hung, B. Styczen, W. Walus, P. Wodniecki, and J. Bleck, wird veröffentlicht.

67 W. Ribbe, Dissertation, FU Berlin 1972.

68 H. Gabriel and J. Bosse, in Angular Correlations in Nuclear Disintegration (Rotterdam Univ. Press, Groningen, 1971).

69 E. Rinsdorf, Dissertation, Erlangen 1972.

70 W. Semmler, Diplomarbeit, FU Berlin 1972.

71 C.P. Flynn, Phys. Rev. 125 (1962) 881.

72 G. Neumann and W. Hirschwald, Phys. Stat. Sol. b55 (1973) 99.

73 J.S. Koehler and T. Kino, J. Phys. Chem. Solids 28 (1967) 317.

74 M. Doyama and J.S. Koehler, Phys. Rev. 127 (1962) 21.

75 Vacancies and Interstitials in Metals, eds. A. Seeger et al. (North-Holland, Amsterdam, 1970).

76 Radiation Effects in Semiconductors, ed. F.L. Vook (Plenum Press, New York, 1968).

77 H. Gabriel, Phys. Rev. 181 (1969) 506.

78 O. Takai, T. Fukusako, R. Yamamato and M. Doyama, Phys. Lett. 44A (1973) 269.

79 A.F. Oluwole, S.G. Schmelling, and H.A. Shugart, Phys. Rev. C2 (1970) 228.

80 N.S. Laulainen and M.N. McDermott, Phys. Rev. 177 (1969) 1606.

81 F.W. Byron, M.N. McDermott, R. Novick, B.W. Perry, and E.B. Saloman, Phys. Rev. 136(1964) B1654.

82 D. Riegel, N. Bräuer, F. Dimmling, B. Focke, and K. Nishiyama, Phys. Lett. 46B (1973) 170.

83 R. Fournier, J. Kroon, T.H. Hsu, B. Hird, and G.C. Ball, Nucl. Phys. A202 (1973) 1.

84 D. Riegel, N. Bräuer, B. Focke, B. Lehmann, and K. Nishiyama, Phys. Lett. 41A (1972) 459.

85 W. Bartsch. W. Leitz, H.-E. Mahnke, W. Semmler, R. Sielemann, Th. Wichert, zur Veröffentlichung eingereicht.

86 H. Bertschat, O. Echt. H. Haas, F. Pleiter, E. Recknagel, E. Schlodder, and B. Spellmeyer, Beitrag zur Int. Conf. on Hyperfine Interactions Studied in Nucl. Reactions and Decay (Uppsala, June 1974).

87 R.E. Shroy, R. Brenn, D.B. Fossan, P.M.S. Lesser, and G. Schatz, Beitrag zur Int. Conf. on Hyperfine Interactions Studied in Nucl. Reactions and Decay (Uppsala, June 1974).

Lebenslauf

Geboren am 31.5.1944 in Gütersloh (Westf.), Sohn des Kaufmanns Helmut Sielemann und seiner Frau Marta, geb. Beckel.

1950 - 60	Volksschule und Realschule in Gütersloh, Mittlere Reife,
1960 - 62	Fachschulpraktikum bei der Maschinenfabrik Miele in Gütersloh, Fachschulreife,
1962 - 64	Westfalenkolleg in Dortmund, Abitur,
1964 - 70	Studium der Physik an der FU Berlin, Diplom bei Prof. Lindenberger mit der Arbeit "Magnetisches Moment des isomeren $9/2^+$-Zustands im ^{73}As und Untersuchungen über die strahleninduzierte Relaxation der ausgerichteten Arsenkerne im kubischen Germaniumgitter",
ab 1970	Wiss. Angestellter im Hahn-Meitner-Institut Berlin; ab Mitte 1971 Wiss. Assistent an der FU Berlin, Fachbereich Physik.

Neben meiner Forschungstätigkeit habe ich Lehraufgaben durch Vorlesungen, Übungen und Praktika an der FU durchgeführt und bei der Ausbildung von Diplomanden in der Arbeitsgruppe "Kernmomente und innere Felder" des Hahn-Meitner-Instituts mitgewirkt.

Diese Arbeit wurde im Hahn-Meitner-Institut Berlin, Bereich Kern- und Strahlenphysik ausgeführt. Herzlicher Dank für ihre Bemühungen um diese Arbeit gilt W. Bartsch, H. Haas, I. Lang, W. Leitz, K.-H. Lindenberger, H.-E. Mahnke, E. Recknagel, W. Semmler und Th. Wichert; außerdem allen nichtgenannten Herren des Beschleunigerbetriebs.